SÉRIE A, N°
N° D'ORDRE :
1

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ

(Mention Sciences Physiques)

PAR

Bernard JOUVE

PREMIÈRE THÈSE

Spectrographie gamma à grande sensibilité pour sources étendues. Application à la mesure de l'activité du corps humain, du verre et du sol

DEUXIÈME THÈSE

Géochronométrie par la méthode potassium 40 - argon 40 -

Soutenues le 19 mai 1962, devant la Commission d'examen

MM. TEILLAC Président

BOUISSIÈRES } Examinateurs
RIOU }

LABEYRIE Invité

SÉRIE A, N°
N° D'ORDRE :
1

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ

(Mention Sciences Physiques)

PAR

Bernard JOUVE

R. UNIV. BIBLIOTHEEK LEIDEN

PREMIÈRE THÈSE

Spectrographie gamma à grande sensibilité pour sources étendues. Application à la mesure de l'activité du corps humain, du verre et du sol

DEUXIÈME THÈSE

Géochronométrie par la méthode potassium 40 - argon 40 -

Soutenues le 19 mai 1962, devant la Commission d'examen

MM.	TEILLAC	Président
	BOUISSIÈRES	Examinateurs
	RIOU	Examinateurs
	LABEYRIE	Invité

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

PROFESSEURS

Doyen ..... ZAMANSKY

G. JULIA	T	Analyse supérieure et Algèbre supérieure
DE BROGLIE	T	Théories physiques
PRENANT	T	Anatomie et Histologie comparées
GRASSE	T	Evolution des êtres organisés
PREVOST	T	Chimie organique
CHAUDRON	T	Chimie appliquée
WYART	T	Minéralogie et Cristal.
TEISSIER	T	Zoologie
MANGENOT	T	Biologie Vég. (Orsay)
AUGER	T	Physique quantique et Relativité
MONNIER	T	Physiologie Générale
PIVETEAU	T	Paléontologie
ROCARD	T	Physique (E.N.S.)
CARTAN	T	Mathématiques (E.N.S.)
LAFFITTE	T	Chimie générale
FAVARD	T	Géométrie supérieure
COULOMB	T	Physique du Globe
Mlle COUSIN	T	Biologie Animale (SPCN)
CHRETIEN	T	Chimie minérale
DRACH	T	Zoologie
KASTLER	T	Physique (E.N.S.)
EPHRUSSI	T	Génétique
RIVIERE	T	Géologie SPCN et sédim.
GAUTHERET	T	Biologie Vég. (P.C.B.)
LUCAS R.	T	Recherches Physiques
THOMAS A.	T	Biologie cellulaire
ARNULF	T	Optique appliquée.
MORAND	T	Physique Enseignement
SOLEILLET	T	Physique (P.C.B.)
FORTIER	T	Mécanique exp. des Fluides
DANJON	T	Astronomie
PETIT	T	Biologie maritime
QUENEY	T	Météorologie et dynamique atmosphérique
GALLIEN	T	Embryologie
EICHHORN	T	Botanique
DE CUGNAC	T	Biologie Végétale (SPCN)
Mlle CAUCHOIS	T	Chimie Physique
THELLIER	T	Physique du Globe
L'HERITIER	T	Biologie Générale (Orsay)
GRIVET	T	Radioélectricité (Orsay)
PONCIN	T	Mécanique Générale
DUBREIL	T	Arithmétique et théorie des Nombres
QUELET	T	Chimie Organique
CAGNIARD	T	Géophysique appliquée
CHAMPETIER	T	Chimie macromoléculaire
CUVILLIER	T	Micropaléontologie
JUNG	T	Pétrographie
TRILLAT	T	Microscopie et diffraction électronique
WIEMANN	T	Chimie organique et struc.
JACQUINOT	T	Spectroscopie et physique céleste (Orsay)
VASSY	T	Physique de l'atmosphère
DESTOUCHES	T	Théories Physiques
AMIEL	T	Chimie générale
HOCART	T	Minéralogie et Cristallog.
J.P. MATHIEU	T	Physique (Optique)
COUTEAUX	T	Biologie animale (P.C.B.)
MAY	T	Zoologie (Orsay)
CHOQUET	T	Théorie des fonctions et Topologie
FELDMANN	T	Biologie Végétale marine
GUINIER	T	Physique des Solides (Orsay)
JOST	T	Physiologie comparée
FORTET	T	Calcul des Probabilités et Physique mathématique
SCHWARTZ	T	Calcul diff. et Intégral
CHOUARD	T	Physiologie Végétale
MALAVARD	T	Aviation (Techn. Aéronaut.)
BRELOT	T	Calcul diff. et intégral
NORMANT	T	Synthèse organique générale
BENARD	T	Chimie Minérale
BUVAT	T	Botanique (E.N.S.)
DUGUE	T	Statistiques Mathématiques
SOULAIRAC	T	Psychophysiologie
ULRICH	T	Physiologie Végétale
MARECHAL	T	Optique théorique et Appl.
KIRRMANN	T	Théories Chimiques
CHADEFAUD	T	Botanique
Mlle LE BRETON	T	Physiologie de la nutri.
SALEM	T	Mathématiques générales
LELONG	T	Applic. de l'analyse à la géométrie
DEVILLERS	T	Anatomie et Histologie Comp.
EHRESMANN	T	Topologie Algébrique
FRANCON	T	Physique (S.P.C.N.)
GLANGEAUD	T	Géographie phys. et Géologie dynamique
GODEMENT	T	Mathématiques (M.P.C.)
PISOT	T	Tech. Mathém. de la Phys.
ROCH	T	Géologie
SCHATZMAN	T	Astrophysique
TERMIER	T	Paléontologie stratig.
ZAMANSKY	T	Mathématiques générales
LENNUIER	T	Physique (M.G.P.)
RIZET	T	Génétique (Orsay)
ROUTHIER	T	Géologie appliquée
Mme TONNELAT	T	Physique Théorique
DIXMIER	T	Mathématiques (M.P.C.)
SOUCHAY	T	Chimie générale
AIGRAIN	T	Electrotechnique géné.
BRUSSET	T	Chimie systématique
M. LEVY	T	Physique théorique des hautes énergies (Orsay)
Mme CHADX	T	Chimie biologique
Mme HUREL-PY		Biologie Végétale (PCB)
PIAUX	T	Chimie (M.P.C.)
BRUN	T	Mécan. théorique des Fluides
LEDERER	T	Chimie biologique
Mme DUBREIL	T	Mathém. (Agrégation)
Mme LELONG	T	Mathématiques (E.N.S.)
BELLAIR	T	Géologie (S.P.C.N.)
COTTE	T	Physique électricité
DUBOIS J.E.	T	Chimie organique
LAMOTTE	T	Zoologie (E.N.S.)
MICHEL A.	T	Chimie Minérale (Orsay)
OLMER	T	Energétique générale
ROUAULT	T	Electricité (Orsay)
GAUTHIER	T	Mécanique appliquée
BARCHEWITZ	T	Chimie Physique
BROSSEL	T	Physique atomique
BUSER	T	Physiologie comparée
CAMUS	T	Physiologie Vég. BMPV
CASTAING	T	Physique (Orsay)
CURIEN	T	Minéralo. et Cristallog.
MOYSE	T	Physiologie Végé. (Orsay)
NOIROT	T	Evolution des Etres Org.
PANNETIER	T	Chimie générale (Orsay)
POSSOMPES	T	Zoologie
PULLMANN	T	Chimie théorique
TEILLAC	T	Physique Nucl. et Radioactivité
TONNELAT	T	Biologie Physico-chim.
VILLE	T	Econométrie
WILLEMART	T	Chimie (P.C.B.)
DODE	T	Chimie (Orsay)
FREYMANN	T	Recherches Physiques
GUINOCHET	T	Biol. Vég. SPCN (Orsay)
ROLLET	T	Chimie (P.C.B.)
Mlle JOSIEN	T	Chimie S.P.C.N.
CHEVALLEY	T	Géométrie algébrique et théorie des groupes
ARNOULT	T	Electronique (Orsay)
CHAPELLE	T	Physique (Orsay)
DELANGE	T	Mathématiques (Orsay)
DENY	T	Mathématiques Géné. Orsay
GERMAIN	T	Mécan. théor. des fluides
LUCAS G.	T	Géologie
ALLARD	T	Chimie Physique
BERTHELOT	T	Phys. Fondamentale des Hautes Energies (Orsay)
BRICART	T	Météorologie et phys. de l'Atmosphère.
Mme ALBE-FESSARD	T	Psychophysiologie
FRIEDEL		Physique des Solides (Ors)
M. JULIA		Etudes des Moléculaires naturelles complexes
LENDER	T	Biol. Animale (SPCN) Orsay
MAGAT		Physico-chimie des radio-éléments
Mlle QUINTIN	T	Electrochimie
MONOD	T	Chimie du métabolisme
BENOIT	T	Physiol. Anim. (Orsay)
DE POSSEL	T	Analyse numérique
CHARLOT	T	Chimie analytique
HAISSINSKY	T	Radiochimie
LEMEE	T	Physiol. Vég. BMPV (Orsay)
GUERIN	T	Chimie M.P.C. (Orsay)
CHATELET M.	T	Chimie (P.C.B.)
JEAN	T	Physique Nucléaire (Orsay)
MATTLER	T	Physique S.P.C.N.
MICHEL L.		Phys. Théor. des Htes Energies (Orsay)
BERGERARD	T	Zoologie (Orsay)
BERTEIN	T	Electronique (Orsay)
BOUISSIERES		Chimie des Radioéléments (Orsay)
Mme COUTURE	T	Thermodynamique et Méc. Physique
ELLENBERGER	T	Géologie appli. s/le terr.
FRANC		Biol. Animale (P.C.B.)
SCHNELL		Botanique tropicale (Orsay)
STOLKOWSKI		Physiologie générale
ACHER		Chimie Biol. (Orsay)
BAUDOIN		Biologie animale P.C.B.
BEAUMONT		Biologie animale SPCN
BLAMONT	T	Géophysique Ionosphère
BOURREAU		Botanique
CURIE D.		Physique (M.G.P.)
DURAND-DELGA		Géologie
FREON	T	Chimie organique (Orsay)
HELLER	T	Physiologie végétale
TORTRAT	T	Calcul des Probabilités
CAILLEUX		Géologie (S.P.C.N.)
MAGNAN	T	Physique (S.P.C.N.)
DAUDEL	T	Mécanique ondulatoire appl. à la Chim. Théor. et à la Phys. Nucléaire
Mlle FOURCHOY		Biol. Végétale (SPCN)
Mme CHOQUET-BRUHAT	T	Méc. Analytique et Méc. céleste
Mlle VEIL		Physiologie Générale
LWOFF	T	Microbiologie
SIESTRUNCK	T	Mécan. Phys. et Expérim.
LACOMBE	T	Métallur. des métaux Nucl.
BROCHARD	T	Physique P.C.B. (Orsay)
CABANNES	T	Mécanique générale
LESIEUR	T	Mathématiques MPC (Orsay)
MAZET	T	Mécanique générale (Orsay)
CAIRE		Géographie phys. et Géol. Dynamique
COMOLET	T	Mécanique des Fluides
CORABŒUF		Physiologie Animale
DELLOUE		Physique de l'exosphère
GORENFLOT		Botanique II (Orsay)
HOUILLON		Biologie Animale P.C.B.
JULLIEN J.		Chimie P.C.B.
MALGRANGE	T	Tech. Math. de la Phys.
OLIVIER		Antropologie
NOZERAN	T	Botanique II (Orsay)
BLANC-LAPIERRE		Physique ENS. (Orsay)

Secrétaire Général ..... R. POULLAIN

Je prie M. le Professeur Jean Teillac qui a bien voulu patronner mon travail, de recevoir l'expression de ma respectueuse gratitude.

Ce m'est un devoir agréable de remercier M. Jacques Labeyrie et M. André Blanc, Chefs de Service et de Section au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, qui m'ont permis grâce à leurs conseils éclairés, de réaliser ce travail.

M. Alain Lansiart a suivi de très près l'évolution de mon travail ; qu'il trouve ici mes remerciementts et ma reconnaissance.

Je remercie également M. le Dr. Mazaury et MM. P. Henry et L. Jeanmaire, grâce au concours desquels certaines des mesures ont pu être effectuées.

Que MM. P. Boulay, J. Leloup et J. P. Morucci trouvent ici l'expression de ma reconnaissance pour l'aide qu'ils m'ont prodiguée pour la construction, la mise au point et l'étalonnage des dispositifs réalisés.

TABLE DES MATIÈRES

		Pages
I	- AVANT-PROPOS	7
	1.1 - Problème posé	7
	1.2 - Etudes effectuées	8
II	- CARACTERES SPECIFIQUES DE LA SPECTROMETRIE DU CORPS HUMAIN	9
	2.1 - Le domaine d'énergie à explorer	9
	2.2 - Existence d'un mouvement propre du corps humain	15
	2.3 - Modification du rayonnement par la matière constituant la source	16
	2.4 - Particularités géométriques	16
	2.5 - Allure du spectre γ d'un homme "normal"	16
III	- CHOIX DU BLINDAGE DU DETECTEUR ET DE L'ELECTRONIQUE ASSOCIEE	19
	3.1 - La réduction du rayonnement parasite	19
	3.2 - Choix du détecteur	23
	3.3 - Caractères de l'électronique associée	24
IV	- DESCRIPTION DES REALISATIONS EFFECTUEES	27
	4.1 - Les ensembles mécaniques et le détecteur	27
	4.2 - Les montages électroniques et les appareils annexes	30
V	- ETUDE DU MOUVEMENT PROPRE	39
	5.1 - Etude expérimentale du mouvement propre	39
	5.2 - Etude des fluctuations du mouvement propre	44
	5.3 - Conclusion : Les possibilites d'utilisation d'une protection mince	45
VI	- ETUDE DES PROPRIETES SPECTROGRAPHIQUES DU SYSTEME SOURCE-DETECTEUR	47
	6.1 - Obtention d'un système détecteur aux performances maximales	47
	6.2 - Cartographie du détecteur	48
	6.3 - Etude avec une source étendue	53
VII	- MESURES SUR LE CORPS HUMAIN : RENDEMENT DE DETECTION ET PRECISION	
	- Introduction	61
	7.1 - Etude de la position du sujet examiné	61
	7.2 - L'étalonnage	65
	7.3 - La précision	72

Pages

VIII - MESURES SUR LE CORPS HUMAIN : ETUDE DE SPECTRES 77

8.1 - Spectres de personnes non contaminées 77

8.2 - Etude de contaminations 79

8.3 - Sensibilité de l'appareil 83

IX - AUTRES APPLICATIONS 87

9.1 - Introduction 87

9.2 - Dosage du potassium dans le verre en présence de radium et de thorium ... 87

9.3 - Etude de la contamination de sols par les retombées radioactives 91

9.4 - Conclusion : L'utilisation de la spectrographie gamma comme méthode d'analyse 96

X - CONCLUSION 101

BIBLIOGRAPHIE 105

I

AVANT-PROPOS

Les progrés réalisés en physique nucléaire ont été liés en partie à l'évolution du détecteur à scintillation et de l'appareillage électronique ; ces derniers ont de même rendu possibles des applications de plus en plus nombreuses et variées de la radioactivité à l'analyse qualitative et quantitative.

Pour l'étude de la radioactivité induite par activation comme pour celles des radioactivités naturelles ou résultant d'un marquage ou d'une pollution, la spectrographie gamma est une méthode particulièrement bien adaptée : la grande pénétration du rayonnement à travers la matière permet de recevoir des informations de tous les points de la source, et les énergies caractéristiques des divers émetteurs gamma sont bien connues ainsi que leurs intensités relatives.

Il a donc paru intéressant d'étudier l'application de cette méthode à la mesure "in vivo" des contaminations internes chez l'homme dont la connaissance est essentielle à la protection des populations et des travailleurs soumis au risque atomique. Ce travail a été entrepris de façon systématique dans un certain nombre de laboratoires depuis 1954 et depuis 1957 par le Service d'Electronique Physique du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE au CENTRE D'ETUDES NUCLEAIRES de SACLAY.

1.1 - PROBLEME POSE

Un appareillage de spectrographie γ pour corps humain doit être capable de déceler et de mesurer des quantités de radioéléments inférieures à celles correspondant aux concentrations maximum admissibles (C. M. A.) dans le milieu considéré (1). En outre, les corps radïoactifs recherchés peuvent être localisés plus ou moins profondément et, suivant l'énergie de leurs rayonnements, les conditions risquent d'être grandement perturbées.

Cependant, les divers éléments contaminants ne s'accumulent pas de la même façon dans l'organisme ; il faut connaître pour chaque radioélément la vitesse de l'élimination naturelle susceptible d'être modifiée par des traitements appropriés (période biologique), et tenir compte simultanément de la période radioactive du corps considéré et s'il y a lieu de celles de ses descendants. L'ensemble de ces phénomènes conduit à attribuer aux éléments radioactifs une "pseudo période" dont la connaissance est essentielle au médecin comme au biologiste ; sa mesure porte sur des quantités de radioéléments encore plus faibles et inférieures aux C. M. A.

Nous verrons enfin qu'il existe une radioactivité naturelle des êtres vivants, du corps humain en particulier. Son niveau, inférieur à celui des C. M. A. , oblige pour la mesurer à exiger de l'appareillage des performances très supérieures à celles nécessaires pour la simple détection des contaminations internes.

Nous donnons dans le tableau figure 50 page 98 , la valeur de la C. M. A. de quelques radioéléments choisis comme exemples de difficultés variées de détection :

---

(1) La C. M. A. , telle que donnée par les normes du Comité International de Protection contre les Radiations est , par définition : "La concentration d'un radioélément dans l'air inhalé ou dans l'eau de boisson exprimée en unité d'activité par unité de volume qui, par une ingestion ou une inhalation exclusive et continue (168 heures/ semaine) entraine pour l'organe critique lorsque l'équilibre est atteint ou bien après 50 ans pour les radioéléments à période effective longue, les doses moyennes hebdomadaires suivantes (moyennes trimestrielles) :

- organisme entier et glandes sexuelles 0,1 rem/semaine
- tissus cutanés et osseux 0,6 -
- autres organes 0,3 -

(d'après H. Doucet [1])

Des corps, tel le ^{137}(Cs + Ba), dont les énergies γ sont supérieures à 0,5 MeV sont en général faciles à détecter. La difficulté de détection s'accroît évidemment lorsque l'énergie de l'émission diminue. Un radioélément tel que le ^{239}Pu (C. M. A. totalité du corps 4.10^{-7} Ci, localisation : poumons) qui émet un rayonnement X d'énergie inférieure à 20 KeV constitue un exemple de détection particulièrement difficile (1). Mais la détection des radioéléments émetteurs γ de relativement faible énergie est souvent facilitée par la localisation (^{131}I: γ de 0,36 MeV - localisation : thyroide, C. M.A. totalité du corps 5.10^{-5} Ci) ou par la valeur relativement élevée des C. M. A.

Par ailleurs, certains radioéléments considérés comme particulièrement dangereux, n'émettent pratiquement pas de rayonnement γ . Il en est ainsi pour le ^{90}(Sr + Y) localisé principalement dans le squelette et dont la C. M. A. pour la totalité du corps est de 2.10^{-5} Ci. Nous verrons dans quelles conditions il est cependant possible de les détecter par le rayonnement de freinage de leurs particules β.

Ajoutons que la spectrométrie γ du corps humain peut être utilisée à la mesure d'une irradiation neutronique grâce au ^{24}Na formé par activation du sodium naturel du sang. Ce radioélément émet un rayonnement énergique dont la détection est facile.

1.2 - ETUDES EFFECTUEES

Il existe plusieurs types d'appareillage pouvant répondre aux conditions précédentes. Du point de vue de l'utilisation, ils diffèrent essentiellement par la rapidité des mesures, leur précision, la sensibilité de détection et le pouvoir de résolution en énergie. Les solutions retenues sont toujours le résultat de compromis entre qualités -souvent contradictoires- et considérations de prix de revient, d'encombrement et de charge au sol.

Après avoir analysé et précisé les données du problème et rappelé brièvement les principales réalisations existantes, nous présentons les solutions retenues et décrivons les diverses versions que nous avons effectivement réalisées.

Nous supposons connus les principes généraux de la spectrométrie γ à scintillation tels qu'ils sont exposés dans divers ouvrages, par exemple dans Siegbahn "β and γ ray spectroscopy" [4], Crouthamel [5] ou Julliot (rapport CEA [6]). Nous étudions les caractères particuliers de nos appareils, leurs performances et les méthodes d'étalonnage utilisables. Nous présentons ensuite les applications à l'étude de la radioactivité γ du corps humain et à la spectrométrie de sources étendues de faible activité (échantillons de terrains par exemple) dont les appareils réalisés permettent également la mesure.

Les résultats atteints sont enfin comparés à ceux des réalisations étrangéres et nous indiquons dans quelles voies nous pensons que ces spectrographes γ à grande sensibilité peuvent encore être améliorés.

---

(1) Ce problème décrit dans [2] [3] se distingue de la mesure du rayonnement γ (technique de détection et caractéristiques du mouvement propre différentes). Nous ne l'aborderons donc pas dans cette étude.

II

CARACTÈRES SPÉCIFIQUES DE LA SPECTROMÉTRIE GAMMA DU CORPS HUMAIN

La spectrométrie γ du corps humain pose un certain nombre de problèmes liés à la nature particulière de la "source radioactive" examinée. Après avoir passé en revue les différents radioéléments à déceler ou à mesurer et défini le domaine d'énergie à explorer, nous décrivons dans ce chapitre les limitations spécifiques de cette mesure, à savoir :

- L'existence d'une radioactivité γ chez "l'homme normal". Nous définissons celui-ci comme un sujet n'ayant reçu aucune contamination interne autre que celle de la moyenne des sujets du même type (compte tenu de la dispersion naturelle des teneurs). La suite de ce travail montrera que les appareils réalisés permettent, outre la recherche des contaminations accidentelles ou volontaires (recherches médicales), l'étude de cette radioactivité "normale".
- Les modifications apportées aux rayonnements par la matière constituant la source.
- La géométrie particulière du système source-détecteur.
- Les limitations dans la durée des mesures.

Ces caractères particuliers se retrouveront, au moins partiellement, dans la spectrométrie des sources à la fois étendues et de très faible activité.

2.1 - LE DOMAINE D'ENERGIE A EXPLORER -

Limitée, aux énergies inférieures, vers une centaine de KeV par l'autoabsorption, la gamme d'énergie à explorer dépend des radioéléments dont on envisage la détection. Ces radioéléments peuvent être naturels ou artificiels :

2.1.1 - Radioéléments naturels.

Les radioéléments naturels émetteurs γ sont principalement :

1/ Le potassium 40

Période $1,25.10^{9}$ ans - Abondance isotopique 0,0119 p. 100

γ de 1,46 MeV $\quad \gamma/\beta = 0,11 \quad$ [7]

(Cet isotope sert de traceur naturel pour le potassium).

2/ Le lanthane 138

Période $1,0.10^{11}$ ans - Abondance isotopique 0,089 p. 100

γ de 1,43 MeV $\quad \gamma/\beta = 1 \quad$ [7]

La teneur en lanthane naturel de "l'homme standard" est d'environ 7.10^{-5} p. 100. On en déduit qu'il existe un rapport de l'ordre de 10 000 entre les activités γ (pratiquement de même énergie) dues au potassium et au lanthane naturels du corps humain. Ce dernier n'est donc pas décelable.

3/ Uranium, thorium et leurs descendants

Ils ont des spectres γ complexes aux raies intenses dont l'énergie s'étend de quelques dizaines de keV à 2,42 MeV (RaC) et 2,62 MeV (ThC") (1).

Leur dosage est assez difficile au niveau de la radioactivité de "l'homme normal" qui est de l'ordre de la limite de sensibilité de la méthode. La détection en cas de contamination est cependant plus aisée. C'est ainsi que l'on peut observer des concentrations plus élevées en Radium chez des sujets ayant été traités par cet élément ou l'utilisant professionnellement. (Contaminations au ^{226}Ra observées chez des sujets travaillant sur des peintures radioactives [11]).

2.1.2 - Radioéléments artificiels.

1/ Retombées radioactives consécutives aux explosions nucléaires.

Elles polluent la végétation et les couches superficielles des sols. Une certaine proportion est absorbée par les plantes, les animaux et l'homme.

Chez l'homme et les mammifères on détecte principalement le ^{137}Cs. Dans la végétation, les éléments observables dépendent de l'espéce végétale et du terrain. Pour qu'un produit de fission puisse s'accumuler dans une plante et par suite ait une probabilité de passer chez l'animal et l'homme, il faut qu'il ait une période suffisamment longue (supérieure à l'année par exemple) et que sa nature chimique permette sa rétention par le sol dans la zone des racines et son absorption par le végétal. C'est le cas du ^{137}Cs et du ^{90}Sr (émetteur β) dont les ions sont échangeables respectivement avec ceux du potassium et du calcium (2).

Dans la terre (ou les animaux ingérant de la terre : vers), on pourra détecter les principaux radioéléments du tableau I, page suivante, à condition que le prélèvement ait été effectué suffisamment près de la surface du sol car la fixation de ces éléments se fait dans les premiers centimètres.

Remarque I - On peut également rapprocher de cette catégorie les retombées consécutives à un accident dans un centre atomique (détection de l'iode à Windscale (Grande Bretagne) par exemple.

Remarque II - En dehors de la contamination proprement dite, le rejet par certaines piles atomiques de gaz radioactifs tels que ^{41}A constitue une gêne pour nos mesures.

2/ Contaminations accidentelles de travailleurs de centres atomiques, d'industries, de laboratoires ou d'hopitaux utilisant des produits actifs :

- Produits de fission (voir figure 1).
- Autres radioéléments artificiels (voir tableau Figure 2, page 12) devenant agents contaminants par suite d'une faute de manipulation ou d'un icident de travail.

3/ Produits d'irradiation accidentelle

On observe principalement le ^{24}Na (γ de 1,38 et 2,76 MeV) produit à la suite d'une irradiation par des neutrons (réaction n, γ de grande section efficace pour le sodium 23). Exemple : accident de Vincha en Yougoslavie.

Indépendamment des accidents graves, la spectrographie γ du corps humain permet de déceler des contaminations faibles, le plus souvent insoupçonnées, et qui permettent d'orienter les précautions à prendre lors de l'emploi des radioéléments ou d'étudier l'influence à long terme de faibles doses d'irradiation.

4/ Radioéléments utilisés pour des recherches particulières.

Bien que notre étude concerne principalement la mesure de contaminations, il est intéressant de citer d'autres applications de la mesure de la radioactivité γ du corps humain publiées lors du Congrès consacré à ce sujet à Vienne en Juin 1961 (3). Dans ces recherches, les radioéléments sont

---

(1) Ces éléments existent à l'état de traces dans presque tous les matériaux et leur activité constitue en général une gêne. Nous montrerons au chapitre X sur un exemple (détermination de la teneur en potassium de billes de verre) comment on peut, dans certain cas, s'en affranchir et nous présenterons à cette occasion les spectres des groupes de l'uranium et du thorium en équilibre séculaire. Rappelons que, parmi les radioéléments de ces séries, le radon et le thoron sont dégagés en permanence par les matériaux de construction et qu'il faut éviter leur accumulation dans le laboratoire de mesure.

(2) Toutefois, lorsque la plante n'a pas été suffisamment lavée, la surface des feuilles est également contaminée.

(3) Les mesures in vivo de radioactivité couramment effectuées dans un but de diagnostic médical après administration d'un radioélément ne concernent en général pas l'ensemble du corps humain. Citons cependant des mesures de ^{85}Sr au Centre de Recherches sur le Cancer d'Argonne (U.S.A.) [12].

Figure 1

Tableau des caractéristiques de l'émission gamma des principaux produits de fission observables entre 10 jours et 5 ans après la réaction

(les chiffres entre parenthèses sont les %. Seules sont notées les énergies dont l'activité relative est supérieure à 1 %. La lettre m désigne l'état excité du noyeau).

élément	période	$\frac{\gamma}{\beta}$	Energies (KeV) et % relatifs tels qu'ils sont observés avec un cristal Na I(T1) 3" 3" (pics ph.)(1)	élément	période	$\frac{\gamma}{\beta}$	Energies (KeV) et % relatifs tels qu'ils sont observés avec un cristal Na I(T1) 3" 3" (pics ph.)(1)
85 Kr 36	m 4,4 h -10 ans	1 0,003	150 (77) 513 (20) 513	132 I 53	2,3 h	1	260 (2). 525 (13,5). 675 (49) 775 (27,5). 965 (4,8) 1160 (1,25)
89 Sr 38	54 j	0,01	915 (provenant de ^{89}Y m vie moyenne 14 secondes)	133 Xe 54	m 2,3 j - 5,3 j	1	233 80 (100)
90 Sr 38	20 a	0	--	137 Cs 55	30 a	0,92	662
90 Y 39	64 h	0,0002	1.734	137 Ba 56	m 2,6 min. - st.		281 (11 % du 662 ^{137}Cs)
91 Y 39	m 51 min. - 58 j	0,02	550 (pratiquement le seul vu si ^{91}Y provient de Sr 1190	140 Ba 56	12,8 j	1	160 (34,5) 540 (43,5) 306 (14) 430 (8)
95 Zr 40	65 j	1	230 (2) 724 (49) 757 (49)	140 La 57	40,2 h	3	330 (25,5) 490 (38,5) 820 (11,5) 925 (5) 1600 (19)
95 Nb 41	m 90 h - 35 j	1	204 230 (compté avec ^{95}Zr) 768 (100)	141 Ce 58	33 j	0,3	142
99 Mo 42	68 h	1	180 (60). 890 (20). 1100(20)	144 Ce 58	: 285 j	0,65	54 (87). 80 (5). 134 (8)
103 Ru 44	40 j	1	498 (95) 615 (5)	143 Pr 59	13,8 j	0	
106 Ru 44	1 a	0	--	144 Pr 59	17 min.	0,02	697 (76) 1480 (9) 2180 (15)
103 Rh 45	m 53 min. st		40 (1). 62 (6). 360 (93)	147 Nd 60	11 j	1	90 (85) 330 412 440 530 (13)
106 Rh 45	30 s	1,25	510 (79). 620 (17,5) 1050 (2,5)	147 Pm 61	2,6 a	0	
132 Te 52	77 h	1	55 (20) 230 (80)	151 Sm 62	90 a	0	
131 I 53	8 j	2,5	80 (11). 284 (8). 364 (76) 638 (3,3)				

(1) compte non tenu des raies X éventuelles

Ce tableau a été dressé à partir des courbes d'activités relatives à diverses époques après la réaction, des produits de la fission de l'uranium 235 par des neutrons lents calculés par Hunter et Ballou [8], des schémas de désintégration publiés dans la "Review of Modern Physics" [7] et des spectres gamma publiés par Heath [9] (Ces derniers ont été obtenus avec un détecteur de caractéristiques voisines du nôtre).

Pierson [10] a publié récemment un tableau complet des intensités relatives des pics gamma des produits de fission pour des époques de 0 à 28 jours de la réaction. La réponse de son détecteur de petite taille diffère de celle du nôtre, principalement pour les énergies élevées.

FIGURE 2

TABLEAU DES PRINCIPAUX RADIOELEMENTS UTILISES DANS LES LABORATOIRES

(D'après Catalogue C. E. A. 1962)

Elément	Symb	$T_{1/2}$	Eβ (MeV)	E γ (MeV)
Antimoine	^{122}Sb	2,7 j.	1,40 - 1,97 - CE	0,56 à 1,14 (0,56 : 70 %)
"	^{124}Sb	60 j.	0,61 à 1,59	0,6 à 2,09 (p^t. 0,6 & 1,7)
"	^{125}Sb	2 a.	0,13 à 0,61	0,17 à 0,64 (p^t. 0,43 & 0,6)
Argent	^{110}Ag	253 j.	0,09 - 0,53	0,116 à 1,51 + TI
"	^{111}Ag	7,5 j.	0,7 à 1,04	0,24 (1 %) 0,34 (8 %)
Argon	^{37}A	34 j.	CE	
Arsenic	^{76}As	26,5 h.	0,36 à 2,97	0,56 à 2,06 (p^t. 0,56)
"	^{77}As	39 h.	0,70	0,086 à 0,53 (faibles)
Baryum	^{131}Ba	12 j.	CE	0,12 à 0,62
"	^{133}Ba	7,5 a.	CE	0,07 à 0,36
Bismuth (Ra E)	^{210}Bi	5 j.	1,17	α
Brome	^{80}Br	4,4 h.	1,38 - 1,99	0,62 (13 %)
		& 18 m.	CE -	T. I.
"	^{82}Br	36 h.	0,45	0,55 à 1,475 (intenses)
Cadium	^{115}Cd	43 j.	0,7 - 1,61	0,49 à 1,15
		& 2,3 j.	0,58 - 1,11	+ raies de ^{115}In
Calcium	^{45}Ca	165 j.	0,25	Néant
Cérium	^{141}Ce	32,5 j.	0,44 - 0,58	0,14 (30 %)
"	^{143}Ce	32,4 h.	0,2 à 1,4	0,06 à 1,10
"	^{144}Ce	284 j.	0,18 à 0,32	0,05 à 2,18 (faibles)
		& 144 Pr	0,8 à 2,97	
Césium	^{131}Cs	9,9 j.	CE	
"	^{134}Cs	2,2 a.	0,083 à 0,657	0,56 à 1,37 (p^t. 0,605)
"	^{137}Cs	30 a.	0,514 - CE	0,662 (82 %)
		+ 137 Ba		
Chlore	^{36}Cl	3,1. 10^5 a.	0,714 - CE	
Chrome	^{51}Cr	27,8 j.	CE	0,325 (9 %) r^t de freinage
Cobalt	^{58}Co	71 j.	β^+ : 0,47 (15 %) - CE	0,81 (100 %) 1,62 (0,5 %)
"	^{60}Co	5,3 a.	0,312 1,48	1,17 (100 %) 1,33 (100 %)
Cuivre	^{64}Cu	12,8 h.	β^- : 0,57 (39 %), β^+, CE	1,34 (0,5 %)
Dysprosium	^{165}Dy	2,35 h.	0,42 - 0,88 - 1,25	0,095 à 0,71
Erbium	^{169}Er	9,5 h.	0,32 - 0,33	0,008
"	^{171}Er	7,5 h.	0,57 à 1,47	0,112 à 0,308
Etain	^{113}Sn	118 j.	CE	T. I. & 0,392 de ^{113}In
"	^{121}Sn	28 h.	0,38	Néant
Europium	^{152}Eu	13 a.	0,56 à 1,38 + CE	0,12 à 1,42
		& 9,35 h.		
"	^{154}Eu	16 a.	0,25 à 1,87	0,123 à 1,277
"	^{155}Eu	1,7 a.	0,15 à 0,25	0,019 à 0,105
Fer	^{55}Fe	2,7 a.	CE	
"	^{59}Fe	45 j.	0,27 - 0,46	0,19 (2,8 %) 1,1 (57) 1,29

Elément	Symb.	$T_{1/2}$	Eβ (MeV)	E γ (MeV)
Gadolinium	^{153}Gd	200 j.	CE	0,069 - 0,097 - 0,103
"	^{159}Gd	18 h.	0,60 - 0,95	0,06 à 0,36 (12 %)
Gallium	^{72}Ga	14 h.	0,64 à 3,17	0,60 à 2,51
Germanium	^{71}Ge	11 j.	CE	
Hafnium	^{175}Hf	70 j.	CE	0,089 à 0,436 (p^t. 0,34)
"	^{181}Hf	45,5 j.	0,41	0,133 à 0,482
Holmium	^{166}Ho	27 h.	0,22 à 1,84	0,08 à 1,62
Indium	^{114}In	50 j. & 72 s.	CE, β^-, β^+	TI et 0,19 (96,5 %)
	^{115}In	4,5 h. & 6.10^{14} a	0,83 - 0,63	TI et 0,335 (95 %)
Iode	^{131}I	8,04 j.	0,25 à 0,81	0,08 à 0,72 (0,36 : 80 %)
"	^{132}I	2,3 h.	0,73 à 2,12	0,53 à 2,20
Iridium	^{192}Ir	74,4 j.	0,24 à 0,66 + CE	0,296 à 0,885 (p^t. 0,32 - 0,47)
"	^{194}Ir	19,7 h.	0,43 à 2,24	0,29 à 1,15
Krypton	^{85}Kr	10,6 a.	0,15 - 0,65	0,52 (0,7 %)
Lanthane	^{140}La	40,2 h.	0,42 à 2,20	0,33 à 3,0 (p^t.0,815)
Lutécium	^{177}Lu	6,75 j.	0,18 à 0,50	0,07 à 0,32 (p^t 0,21)
Manganèse	^{56}Mn	2,6 h.	0,65 à 2,81	0,845 à 2,13 (p^t.0,85)
Mercure	^{197}Hg	23 h. & 65 h.	CE	TI 0,133 à 0,912
"	^{203}Hg	46 j.	0,21	0,279
Molybdène	^{99}Mo	67 h.	0,41 à 1,18	0,04 à 0,78
Néodyme	^{147}Nd	11,1 j.	0,23 à 0,83	0,09 à 0,69 (p^t. 0,09)
Nickel	^{63}Ni	125 a.	0,067	
"	^{65}Ni	2,6 h.	0,60 à 2,10	0,37 - 1,12 - 1,49
Niobium	^{95}Nb	35 j.	0,16	0,765 (100 %)
Or	^{198}Au	2,7 j.	0,29 à 1,37	0,41 à 1,09
"	^{199}Au	3,1 j.	0,25 à 0,46	0,05 à 0,208
Osmium	^{191}Os	14,4 j. & 14,6 j.	0,143	TI 0,04 à 0,13
"	^{193}Os	31 h.	0,68 à 1,14	0,07 à 0,56
Palladium	^{103}Pd	17 j.	CE	0,053 à 0,495
"	^{109}Pd	13,5 h.	1,03	0,087 à 0,77
Phosphore	^{32}P	14,5 j.	1,707	
Platine	^{197}Pt	18 h.	0,47 à 0,67	0,077 - 0,19
Polonium (Ra F)	^{210}Po	138,4 j.	α	0,8 (1,2.10 %)
Potassium	^{42}K	12,5 h.	0,5 à 3,6	1,51 (18 %)
Praséodyme	^{142}Pr	19,2 h.	0,59 - 2,17	1,57 (4,1 %)
"	^{143}Pr	13,8 j.	0,93	
Prométhèum	^{147}Pm	2,6 a.	0,22	
"	^{149}Pm	54 h.	1,05	0,285 - 1,3 (faible)

Elément	Symb.	$T_{1/2}$	E β (MeV)	E γ (MeV)
Protactinium	^{233}Pa	27 j.	0,15 à 0,57	0,313 (80 %) + faibles
Rhénium	^{186}Re	90 h.	0,93 - 1,07 CE	0,123 à 0,768 (0,137 : 22 %)
"	^{188}Re	17 h.	1,9 à 2,12	0,155 (9 %) à 1,96 (faibles)
Rhodium	^{105}Rh	35,6 h.	0,25 - 0,57	0,157 (f) - 0,32 (5 %)
Rubidium	^{86}Rb	18,7 j.	0,23 à 1,78	1,08 (8,8 %)
Ruthènium	^{97}Ru	2,9 j.	CE	0,097 et γ ^{97}Tc
"	^{103}Ru	40 j.	0,13 à 0,70	0,04 à 0,61 (via ^{103}Rh)
"	^{105}Ru	4,5 h.	1,15	0,73
"	^{106}Ru	1 a.	0,039 + ^{106}Rh (30s)	0,51 (30 %) 0,62 (15 %)
Samarium	^{153}Sm	47 h.	0,13 à 0,83	0,07 à 0,60
Scandium	^{46}Sc	84 j.	0,36 et 1,25	0,89 et 1,12
Sélénium	^{75}Se	120 j.	CE	0,025 à 0,40
Silicium	^{71}Si	2,64 h.	1,47	1,26 (0,07 %)
Sodium	^{24}Na	15 h.	1,39 et 4,17	1,38 (100 %) 2,76 (100 %)
Soufre	^{35}S	87 j.	0,167	
Strontium	^{87}Sr	2,8 h.	TI 0,39	
"	^{89}Sr	50,4 j.	1,14 - 1,46	T.I - 0,915 (faible)
"	^{90}Sr	28 a.	90 y (644) 0,545 à 2,26	1,734 (très faible)
Tantale	^{182}Ta	115 j.	0,36 à 0,51	de 0,067 à 1,231
Technétium	^{97}Tc	91 j.	CE	T.I 0,096
"	^{99}Tc	64 a. & 2,1. 10^5 a.	0,290	T.I. et 0,140
Tellure	^{127}Te	9,4 h.	0,28 à 0,70	TI & 0,06 à 0,42 (f.)
"	^{132}Te	78 h.	0,02 + CE	Q,053 - 0,23 (95 %)
Terbium	^{160}Tb	73 j.	0,46 à 1,77	0,087 à 1,27
"	^{161}Tb	7,1 j.	0,41 à 0,53	0,026 à 0,077
Thallium	^{204}Tl	3,9 a.	0,76 - CE	
Thulium	^{170}Tm	127 j.	0,88 - 0,97 - CE	0,084 (3 %)
Tritium	^{3}H	12,3 a.	0,018	
Tungstène	^{185}W	74 j.	0,430	
"	^{187}W	24 h.	0,34 à 1,33	0,072 à 0,686
Ytterbium	^{169}Yb	32 j.	CE	0,008 à 0,31
"	^{175}Yb	4,1 j.	0,07 à 0,468	0,114 à 0,396
Yttrium	^{90}Y	64,4 h.	0,526 - 2,26	1,734 (très faible)
Zinc	^{65}Zn	245 j.	β - 0,324 et CE	1,11 (44 %)
"	^{69}Zn	139 h. & 55 m.	0,897	T.I. 0,438
Zirconium	^{95}Zr	65 j.	0,36 à 0,89	0,72 - 0,76
"	^{97}Zr	17 h.	1,9	TI. via 97 Nb (60s) 0,75

introduits volontairement comme traceurs. Lorsque leur répartition concerne l'ensemble du corps humain ou une partie très étendue, l'utilisation systématique des spectrographes pour corps humain s'impose évidemment pour suivre leur métabolisme. Citons :

- Recherches sur le métabolisme :
  - Etude de la vitamine libre B 12 [13]
  - Etude du squelette à l'aide de calcium ou de fer marqués [14]
- Diagnostics de carences potassiques qui font apparaitre de grandes difficultés d'étalonnage [15]
- Etude in vivo de la fixation des poussières à l'aide de générateurs de poussières marquées de granulométries bien définies [16]

Les examens classiques du corps humain seront, en conclusion, pratiqués dans l'intervalle 0,1 à 1,6 MeV qui permet de déceler toutes les contaminations. Cependant, il sera parfois nécessaire de préciser l'étude en poursuivant l'examen jusqu'à 3 MeV (recherche du ^{24}Na et des descendants de l'uranium et du thorium).

On peut également, avec des détecteurs appropriés, étudier les faibles énergies et rechercher certains émetteurs α , comme le ^{239}Pu par leur émission X.

2.2 - EXISTENCE D'UN MOUVEMENT PROPRE DU AU CORPS HUMAIN

2.2.1 - Le potassium 40.

C'est le principal émetteur γ naturel. Il se localise surtout à l'intérieur des cellules musculaires.

Le potassium naturel émet par suite de l'isotope ^{40}K en moyenne 3,5 photons γ par seconde et par gramme. La masse de potassium du corps humain étant de l'ordre de 140 g, l'activité γ correspondante est d'environ 490 γ émis par seconde (on peut admettre que les 2/3 du rayonnement sortiront effectivement du corps). Dans ces conditions, en supposant la totalité du potassium concentré en un point distant de 40 cm d'un détecteur, ce dernier recevrait environ $4.10^{-2}\gamma$ /s.cm^2. Cette valeur est voisine du flux de mésons μ dû au rayonnement cosmique (2.10^{-2}) mais très inférieure à l'activité γ des autres rayonnements parasites de l'air et des matériaux de construction (de l'ordre de 10 γ/s.cm^2).

Remarque I - L'émission β^- de 1,32 MeV de cet élément (89 p. 100 en moyenne des désintégrations) produit par rayonnement de freinage un spectre continu γ de faible énergie s'ajoutant au précédent.

Remarque II - La teneur en potassium est variable d'un individu à un autre et on peut admettre que l'activité en potassium chez l'adulte est en réalité comprise entre $0,5.10^{-7}$ et 2.10^{-7} curie avec une émission moyenne de 11 γ pour 100 désintégrations ; (soit un ordre de grandeur de 10^{-8} Ci gamma).

2.2.2 - Le radium 226.

Il est localisé principalement dans les os et l'activité en ^{226}Ra de l'adulte "normal" varie entre $0,5.10^{-10}$ et 5.10^{-9} Ci. Celle-ci est à priori très faible et nous verrons qu'elle ne constitue pas une gêne. Au contraire, sa mesure exacte est, comme nous l'avons dit, difficile.

2.2.3 - Le césium 137.

Il entre dans la chaîne alimentaire humaine par l'intermédiaire des produits animaux (viande, lait) et son métabolisme est voisin de celui du potassium. Sa période radioactive est de 33 ans mais sa période biologique est de l'ordre de 2 mois et la quantité de ^{137}Cs chez l'individu a régulièrement augmenté de 1945 à 1958, époque où elle s'est stabilisée à une valeur d'ailleurs très inférieure aux doses de tolérance admises. On peut admettre que l'activité en ^{137}Cs chez l'adulte varie entre 2.10^{-9} et 10^{-8} Ci (en 1960). La quantité maximum permise pour la totalité du corps est 3.10^{-5} Ci or la quantité moyenne présente décroissait depuis le 1er semestre 1961. (Elle est au 1er semestre 1962 de 7.10^{-9}Ci.

Le ^{137}Cs se désintègre par émission β^- pour donner soit directement le ^{137}Ba (8 p. 100 des désintégrations en moyenne, β^- de 1,17 MeV) soit du ^{137}Ba dans un état excité (92 p. 100 des désintégrations, β^- d'énergie maximum 0,51 MeV). Le ^{137m}Ba, de période 2,6 minutes, se désexcite, soit par conversion interne (K + L + M : 11,8 p. 100), soit par émission γ à 662 keV. Il y a donc en moyenne 0,811 γ par désintégration.

2.3 - MODIFICATIONS DU RAYONNEMENT PAR LA MATIERE CONSTITUANT LA "SOURCE" -

1/ Absorption.

Le coëfficient d'absorption diminue très vite quand l'énergie augmente: Les rayonnements énergiques sont beaucoup moins absorbés que ceux de faible énergie. La répartition des intensités du rayonnement reçus par le détecteur en fonction de l'énergie est donc modifiée. Des inégalités d'absorption d'origine géométrique peuvent également modifier le spectre original.

2/ Diffusion Compton.

La diffusion Compton des rayonnements émis dans le corps et la diffusion, par le corps, des rayonnements parasites augmentent la proportion du rayonnement γ de faible énergie atteignant le cristal. Cet effet s'ajoute à celui de la diffusion Compton dans le cristal pour dégrader le spectre.

Cet effet est considérable et ne peut pratiquement pas être calculé. Nous avons effectué des expériences sur la déformation des spectres par autoabsorption et diffusion Compton dans du plexiglas. Ce corps a été choisi car sa composition et sa densité représentent approximativement le corps humain. Les résultats sont donnés Chapitre VII.

3/ Le rayonnement de freinage.

L'intensité du rayonnement de freinage est proportionnelle au numéro atomique de l'absorbant et à l'énergie des électrons qui lui donnent naissance. Le corps humain contient en majorité de l'oxygène Z = 8 ; le rayonnement de freinage doit pour certains émetteurs β énergiques être pris en considération.

L'intensité du rayonnement émis décroît très vite lorsque l'énergie augmente (pour un électron d'énergie donnée dans un absorbant donné): il enrichit les bases énergies du spectre et risque d'être une source d'erreur dans les étalonnages des émetteurs de basse énergie où il doit faire l'objet d'une correction. Encore appréciable dans le cas du ^{40}K (9β pour 1γ , E Max 1,33 MeV) comme le montre la figure 46 (spectre d'un mélange de sable et de K C1 vu par un cristal NaI (T1) de grande taille), il peut être complètement négligé pour le ^{137}Cs (environ 1β pour 1γ , E max 0,6 MeV).

Inversement, ce phénomène peut être utilisé pour la détection γ d'émetteurs β purs (exemple contamination au $^{90}(Sr + Y)$ énergie 0,55 et 2,26 MeV à condition de connaître le spectre du sujet avant sa contamination).

2.4 - PARTICULARITES GEOMETRIQUES

La "source" constitue un très grand volume impossible à réduire. Pour que le rendement géométrique de collection du rayonnement par le détecteur soit élevé et ne varie pas trop suivant les points de la source on va tendre, soit à agencer le détecteur de façon à envelopper le sujet, soit à disposer le sujet de façon à envelopper le détecteur. Dans la deuxiéme solution (que nous avons adoptée)le détecteur devra donc avoir le meilleur rendement géométrique possible, par suite être de grande dimension.

Si l'émetteur étudié est uniformément réparti, le rendement varie avec l'élément de volume considéré : variation d'angle solide et d'absorption et diffusion. Si l'émetteur est localisé, le détecteur pourra être placé au-dessus de la source mais le spectre sera encore déformé par absorption et diffusion. Dans les deux cas, la mesure de la quantité de radioélément présent suppose un étalonnage préalable.

2.5 - ALLURE DU SPECTRE γ D'UN "HOMME NORMAL"

^{40}K et $^{137}(Cs + Ba)$ sont les deux émetteurs γ que l'on distingue nettement à l'époque actuelle (1961) sur un tel spectre. La figure 3 donne à titre d'exemple celui obtenu avec un cristal NaI (T1) de grand volume ($\emptyset$ 20 cm, h 10 Cm) placé au-dessus de l'abdomen. Les pics photoélectriques du potassium et du césium apparaissent nettement.

On voit sur la figure que le spectre se prolonge au-delà de 1,6 MeV (valeur limite habituellement choisie pour être certain de mesurer la totalité du pic du potassium). Cependant, le spectre de "l'homme normal" est particulièrement difficile à effectuer pour les énergies supérieures à cette valeur et encore controversé.

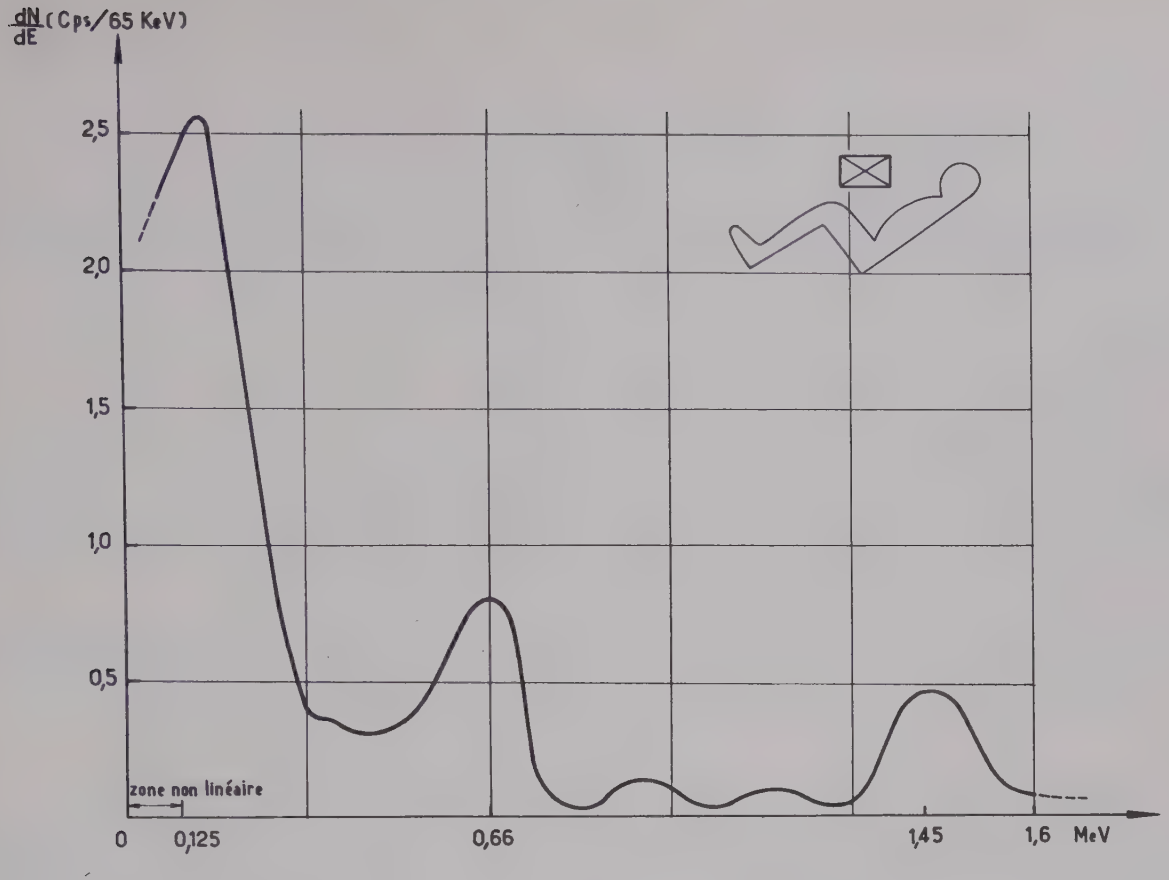


Figure 3 - Spectre gamma type de l'homme normal. Mouvement propre déduit, comptage en 1 000 secondes. Mesure avec un détecteur unique, position assise.

III

CHOIX DU BLINDAGE, DU DÉTECTEUR ET DE L'ÉLECTRONIQUE ASSOCIÉE

Nous avons examiné au chapitre précédent les caractères particuliers résultant de la nature de la "source" étudiée. Ces derniers conduisent, pour la réalisation d'un appareillage de spectrographie γ pour corps humain, à choisir entre diverses options que nous allons maintenant examiner et qui concernent :

- Le problème du blindage

Dû à la nécessité d'atténuer le rayonnement parasite; l'importance de ce blindage est un compromis entre l'efficacité, l'encombrement et le prix de la protection : le poids devient vite très important par suite du grand volume intérieur nécessaire.

- Le choix du détecteur.

- Les caractères de l'électronique associée.

La faible activité de la source étudiée impose l'examen simultané de toutes les informations qui en proviennent : il faut utiliser un sélecteur d'amplitudes multicanaux : nous discutons le nombre optimum de ces derniers. Le taux de comptage admissible et l'influence des mélanges par l'action des impulsions de très grande amplitude conduisent également à des choix de matériels, de réglages qui sont discutés.

3.1 - LA REDUCTION DU RAYONNEMENT PARASITE

3.1.1 - Origine du rayonnement parasite.

1/ La présence de traces de corps radioactifs naturels dans le détecteur et son montage, l'enceinte de mesure, les murs du laboratoire et le sol.

C'est la source principale de rayonnement parasite. En l'absence de sources dans le laboratoire, l'irradiation continue due au sol et aux murs de la pièce (par suite notamment de leur teneur en uranium, thorium et de leurs descendants) est de l'ordre de 10^{-5} roentgen/heure, correspondant à un flux γ moyen de l'ordre de 10 photons par seconde et par cm^2. La radioactivité des matériaux constituant le blindage (1) contribue, avec celle du détecteur, à créer un bruit de fond irréductible. (On peut trouver parfois du Ra dans le plomb, du ^{60}Co et des produits de fission dans le fer [18] etc .....)

Remarque - La radioactivité du terrain sur lequel est bâti le laboratoire peut n'être pas négligeable et varier avec la teneur en uranium ou radium du sol (selon, en particulier, que les terrains sont granitiques ou sédimentaires) et avec les conditions météorologiques (dégagement de radon).

2/ La radioactivité véhiculée par l'air. Pour une installation aux performances limitées (mesure des contaminations internes), nous verrons que le comptage apporté par le radon, le thoron et leurs descendants n'est pas important si on prévoit un renouvellement normal de l'air du laboratoire. Il n'en est pas de même de l'activité due aux rejets des piles atomiques (gaz ou poussières) qui constitue un facteur majeur de l'instabilité du mouvement propre dans un laboratoire installé dans un centre atomique.

---

(1) Leur choix est fait après contrôle de leur radioactivité. Il en est de même pour les peintures, autres matériaux ou accessoires à disposer à l'intérieur de l'enceinte.

3/ Le rayonnement cosmique

Il produit, en moyenne, au niveau de la mer un choc par minute et par cm^2 de détecteur (son intensité est maximum dans la direction du zénith). Il est gênant principalement en raison de sa composante à grande énergie provoquant des surcharges pour l'électronique. (cf. paragraphe 5.2.3.).

4/ Rayonnement direct dû au fonctionnement des grands accélérateurs.

Ses effets étaient à redouter à priori à Saclay, mais en réalité nous n'avons jamais pu mettre en évidence de perturbation liée au fonctionnement du synchrotron à protons de 3 GeV "SATURNE" distant de 500 m de notre laboratoire.

Remarque - A ces causes perturbatrices, il convient d'ajouter la présence éventuelle et le déplacement intempestif de sources γ dans le laboratoire ou les pièces voisines. On ne doit tolérer dans celles-ci que des sources d'étalonnage bien protégées et d'activité réduite.

3.1.2 - Le rapport signal sur bruit.

1/ Influence de l'épaisseur de blindage sur l'erreur statistique.

En pratique, on soustrait dans chaque bande d'énergie le comptage obtenu en l'absence de source, du comptage obtenu avec la source. L'écart quadratique moyen résultant de cette différence est la racine carrée de la somme des carrés des écarts sur chaque mesure :

$$\sigma = \sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}$$

Les fluctuations possibles du niveau d'activité des rayonnements parasites empêchent de diminuer l'erreur statistique en augmentant beaucoup les temps de comptage. Pratiquement, nous comptons le mouvement propre pendant le même temps que la source et la formule ci-dessus devient

$$\sigma = \sqrt{n + 2b}$$

n comptage net de la source
b comptage du mouvement propre pendant le même temps
Si nous appelons x le rapport signal sur bruit à l'intérieur de la protection

$$x = \frac{n}{b},$$

la variance relative sur la mesure s'écrit alors :

$$y^2 = \left(\frac{\sigma}{n}\right)^2 = \frac{1}{v.t}\left[1 + \frac{2}{x}\right]$$

v étant le taux de comptage net de la source.

Si X est le rapport signal sur bruit hors protection et a le facteur d'atténuation réalisé par une protection dans une bande d'énergie, on peut écrire :

$$x = \frac{X}{a} \quad \text{avec} \quad a = \frac{I_o}{I} = e^{\mu d}$$

(μ coefficient d'absorption de la matière constituant la protection d épaisseur du blindage)

Ce qui montre que y^2 diminue très vite quand d augmente.

En outre μ, donc a, est fonction de l'énergie et il faut tenir compte du spectre réel du rayonnement ambiant. Un spectre effectué détecteur hors protection (figure 4) peut en donner une idée et on peut étudier en fonction de l'énergie la proportion du comptage dans une bande par rapport au comptage total. En comparant à la variation $\mu = f(E)$, on voit (tableau ci-dessous) que l'épaisseur de blindage est imposé par les énergies élevées :

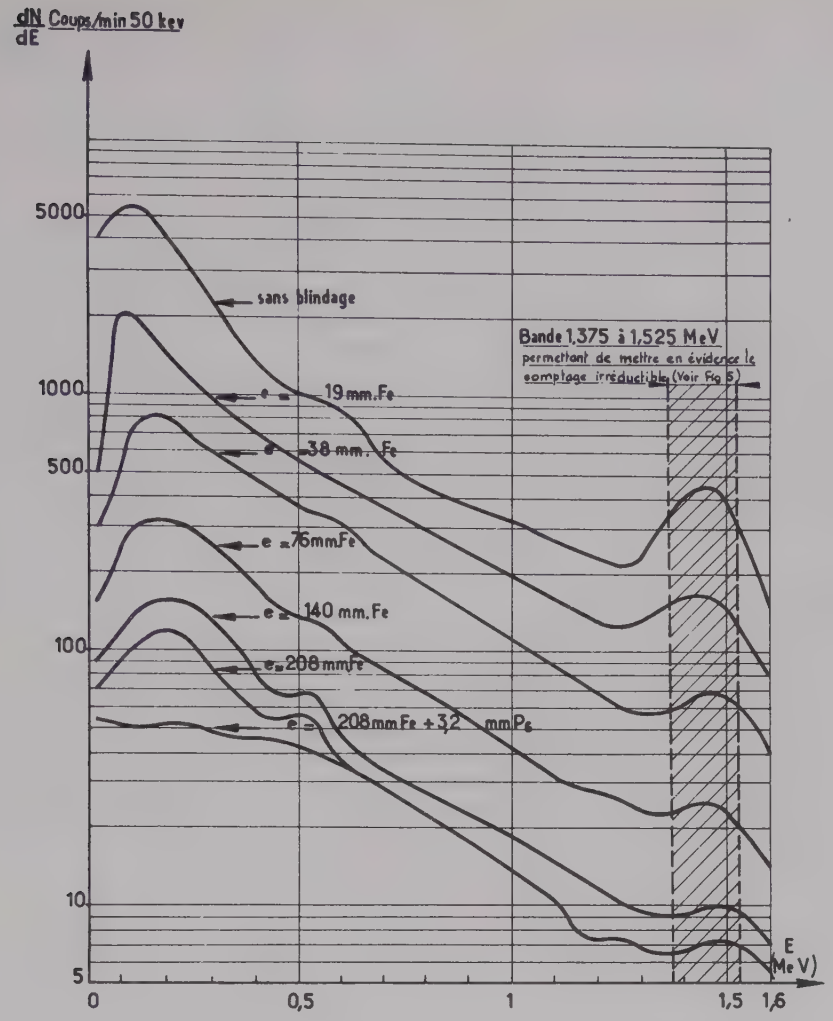


Figure 4 - Spectres de mouvement propre en fonction de l'épaisseur du blindage (d'après J. E. Rose et L. D. Marinelli. ANL Feb. 58 [12]) Spectres obtenus avec un cristal NaI (T1) Ø 8" h=4" au centre d'une pièce en fer dont les dimensions intérieures sont 2,4 × 2,2 × 1,9 mètres, les parois ayant une épaisseur uniforme.

Energie (MeV)	Pourcentage du comptage dans une bande de 50 keV	μ total Fer (cm^{-1})	μ total Plomb (cm^{-1})
0,1	14	2,9	62
0,5	2,7	0,66	17,2
1	0,84	0,47	0,80
1,5	0,96	0,38	0,59

1/ Etude expérimentale : Le comptage irréductible.

L'étude expérimentale de l'augmentation de a avec d a été effectuée au laboratoire Argonne à Chicago (Etats Unis) [19] à l'aide d'un détecteur NaI (T1) de diamètre 20 cm et épaisseur 10 cm. La géométrie est constante de même que le matériau constituant le blindage (fer).

Pour le fer et 1,5 MeV, les tables donnent pour le facteur d'absorption totale [4] 0,0484 $cm^2 . g^{-1}$, soit une densité 7,86, μ = 0,38 cm^{-1} d'où, pour μd = 1 : d = 2,6 cm.

Pratiquement, une épaisseur de fer de 2,5 cm doit diviser le rayonnement par e, d'où le tableau des intensités résiduelles attendues :

d = 2,5 cm	I # 37 p. 100
d = 5 cm	I # 12,5 p. 100
d = 7,5 cm	I # 5 p. 100
d = 10 cm	I # 2 p. 100
d # 15 à 20 cm	I # 0,1 p. 100

La figure 4 représente les pectres de mouvement propre réellement obtenus.

Pour les épaisseurs d'absorbant inférieures à 60 mm environ l'absorption est supérieure à l'absorption théorique ; au contraire pour les épaisseurs supérieures, l'absorption apparente est moins élevée que prévue. Ceci s'explique par la radioactivité propre au détecteur et à son montage qui contiennent du ^{40}K émettant une énergie de 1,48 MeV. Il y a donc une valeur limite de l'activité apparente b minimum et une erreur limite y minimum. D'autre part, il lui correspond sur les spectres, figure 4, un pic photoélectrique assez étalé et dont on ne considère qu'une certaine partie en comptant dans la bande choisie. La forme du spectre apparent varie très vite lorsqu'on place un blindage et la proportion du comptage dans la bande de 150 KeV centrée autour de 1,5 MeV.

3/ Influence des matériaux constituant le blindage.

Ils interviennent par la valeur, pour une énergie donnée du coefficient d'absorption totale μ .

Pour des énergies supérieures à 0,5 MeV environ, μ exprimé en cm^2/g dépend peu de la matière de l'absorbant et le coefficient a varie surtout avec le poids du blindage. Pour les énergies inférieures, le fer mais surtout le plomb sont les absorbants les meilleurs.

Le laboratoire Argonne (Miller, Marinelli .....) a effectué une étude expérimentale très complète des variations du facteur d'atténuation comme de tous les problèmes de blindage. Il y a été étudié en particulier des protections en fer, en fer doublé de plomb, des coques complémentaires autour du détecteur en plomb, en cuivre électrolytiquement pur, en mercure tridistillé, etc....(1). Ils ont également utilisé des couronnes de compteurs montés en anticoincidence contre le rayonnement cosmique. La contribution des différents facteurs au mouvement propre a ainsi pu être précisée [19].

3.1.3 - Choix du blindage.

Les résultats obtenus seront d'autant meilleurs que l'épaisseur du blindage est plus grand, mais il est inutile de réduire les rayonnements parasites extérieurs lorsque ceux-ci sont stables à une valeur inférieure à l'ordre de grandeur du comptage irréductible du détecteur.

Une épaisseur de 20 cm de fer est indiquée lorsque le rayonnement extérieur varie et conduit à une piéce blindée d'environ 50 tonnes. (Le fer est choisi pour des raisons mécaniques et économiques). On voit en effet sur la figure 5 que, pour une bande d'énergie prise autour de 1,5 MeV et en admettant l'absorption expotentielle, le rayonnement extérieur est divisé par 1 000 pour 20 cm de fer. La plus petite bande d'énergie considérée en spectrométrie du corps humain étant de l'ordre de 70 keV, la fluctuation statistique en 1/4 d'heure du mouvement propre irréductible (10 chocs/minute pour cette bande à 1,5 MeV) est alors de l'ordre de 1 choc/minute. Cette activité est la même que celle due au rayonnement extérieur pénétrant à l'intérieur de la protection, mais on peut s'attendre à ce que la composante cosmique du comptage irréductible varie dans de plus larges mesures.

Un blindage plus mince et par suite plus économique est parfaitement convenable pour des mesures de contaminations et sera alors avantageusement effectué en plomb qui, a protection égale, est plus léger. Un blindage de 5 cm en plomb laisse passer un rayonnement parasite pratiquement de la valeur du comptage irréductible dans l'intervalle 0,1 à 1,6 MeV. Pour une bande d'énergie de 70 keV centrée sur 1,5 MeV, la fluctuation statistique introduite ne sera que d'environ 2 chocs/minute.

---

(1) Notons cependant que des coques successives en matériaux différents chacune absorbant les raies X d'excitation de celle qui la précède sont de peu d'intérêt dans notre problème ou l'énergie la plus faible que nous considérerons est d'une centaine de keV.

3.2 - CHOIX DU DETECTEUR

3.2.1 - Existence de deux classes d'appareils.

Les détecteurs susceptibles d'être actuellement envisagés sont du type à ionisation (chambres d'ionisation et compteurs proportionnels) ou à scintillations (scintillateurs liquides, plastiques ou inorganiques). En pratique, il existe deux classes d'appareils susceptibles d'effectuer un comptage sur le corps humain :

- ceux qui effectuent un controle rapide de l'activité totale du corps humain ou de l'activité dans une bande d'énergie large et

- ceux qui effectuent véritablement une spectrographie.

1/ Appareils à comptage.

Dans cette catégorie d'appareils, on cherche à augmenter au maximum le rendement de comptage.

Pour y parvenir, on s'efforce de réaliser une géométrie voisine de 4π : Le détecteur enveloppe au moins partiellement le sujet. L'importance relative de la diffusion par le blindage est alors accrue en raison de la diminution de la distance blindage-détecteur mais ce n'est pas un inconvénient lorsqu'on ne se propose pas d'effectuer une spectrographie.

A cette catégorie d'appareils appartiennent les premières installations réalisées dont le blindage était constitué par une grande épaisseur d'eau et dont les détecteurs étaient de grandes chambres d'ionisation remplies sous une dizaine d'atmosphère d'azote ou de CO_2. (Réalisation Suédoise de Spiers en 1951 [20] et Anglaise et Danoise de Rundo vers la même époque [21]). L'efficacité de ce type de détecteur est faible : les mesures duraient environ 24 heures sans offrir aucune possibilité de distinction de l'énergie des γ reçus. A cette catégorie d'appareils appartiennent également les installations beaucoup plus modernes telles que celles construites sous la direction d'Anderson aux Etats Unis dont il existe deux types : le compteur de Los Alamos et le compteur de Genève [22] [23]. Le détecteur est un liquide scintillant "vu" par 108 photomultiplicateurs de 5 cm de diamètre dans le compteur de Los Alamos (géométrie voisine de 4π) et vu par 6 P. M. de diamètre 40 cm dans le compteur plus récent type Genève (géométrie voisine de 2π). Les volumes de scintillateur sont respectivement 560 et 280 litres et les poids des blindages 20 tonnes et 10 tonnes. On peut discriminer plusieurs bandes d'énergie (demi résolution pour 1,6 MeV 30 p. 100 environ) ; l'efficacité est bonne et permet des temps de mesure de l'ordre de la minute.

Citons enfin l'installation de Leeds (Angleterre 1961) qui utilise trois scintillateurs plastiques de 50 cm × 25 cm × 16 cm "vus" chacun par deux photomultiplicateurs de diamètre 16 cm. La demi-résolution pour ^{40}K atteint 14 p. 100. Cette installation [24] réalise -également du point de vue de l'efficacité- un intermédiaire entre les deux catégories d'appareil.

2/ Appareils spectrographiques.

Cette catégorie comprend notamment les installations du laboratoire d'Argonne déjà citées [19] [25], celles de Rundo à Harwell (Angleterre) [26] et celles que nous présentons. Elles utilisent toutes des détecteurs constitués par des monocristaux de iodure de sodium activés au thallium (NaI, [Tl]).

Le NaI (Tl) s'impose car sa réponse est proportionnelle au-dessus d'une trentaine de keV, à la température ordinaire il est parmis les corps ayant le meilleur rendement de scintillation (14 p. 100 environ). Il émet suivant un spectre correspondant à celui de la sensibilité des photocathodes (maximum vers 4 100 Å) et il est très transparent pour ce domaine spectral. Le temps de décroissance des scintillations (de l'ordre de 25.10^{-8} s à la température ordinaire) est assez bref pour permettre des taux de comptage élevés. La résolution en énergie est bonne (résolution théorique de l'ordre de 4 p. 100 pour le ^{40}K) et la reproductibilité excellente. Enfin les méthodes de fabrication sont maintenant très au point ; en particulier, on sait obtenir le NaI (Tl) très pur, homogène, et en cristaux de dimensions supérieures à 20 cm en diamètre et 10 cm en épaisseur.

3.2.2 - Choix de la forme du détecteur.

1/ Surface sensible du scintillateur.

L'efficacité géométrique de détection dépend de la surface de détecteur vue de chaque point de la source. Cette surface doit être suffisante pour permettre d'obtenir une précision statistique de quelques pour cents pour un temps de mesure de l'ordre du quart d'heure, résultat obtenu pour une valeur de 1200 cm^2 environ permettant de recevoir entre 0,1 et 1,6 MeV 10 chocs/seconde dus à la radioactivité naturelle d'un sujet adulte non contaminé tandis que le mouvement propre dans cette bande d'énergie est au plus de 30 chocs/seconde avec les épaisseurs de blindage choisies.

D'autre part, pour des raisons technologiques (meilleure collection de lumière notamment), les monocristaux de NaI (T1) sont toujours cylindriques. Choisir la forme du détecteur revient alors à déterminer le nombre de cristaux utilisés et le rapport de l'épaisseur au diamètre.

2/ Choix du nombre de cristaux.

On peut envisager l'utilisation de plusieurs cristaux petits de préférence à un seul gros cristal. C'est la solution choisie par J. Rundo [25] dans un appareil où le sujet est couché avec deux détecteurs au-dessus de lui dans la région du tronc et deux autres sous lui vers les extrémités. Les cristaux ont 12,5 cm de diamètre et d'épaisseur ce qui est largement suffisant pour avoir une absorption convenable des rayonnements énergiques de la source [1].

Cette solution permettait d'utiliser la production anglaise de l'époque et d'obtenir à coup sur un rendement géométrique du même ordre pour les différentes parties du corps. Elle conduit cependant à augmenter le volume total de scintillateur utilisé et diminue la sensibilité en cas d'essai de localisation d'un contaminant.

Nous avons par suite préféré utiliser un cristal unique et aménagé en conséquence la position du patient pour que la distance source-cristal ne varie pas trop suivant les points du corps. Avec cette disposition, *l'emploi d'un collimateur amovible nous permet une detection localisee* avec une bonne sensibilité et permet l'application des appareils réalisés à la spectrographie d'autres sources de volume moins étendu.

Cette dernière condition conduit à donner au cristal un diamètre assez grand de façon à ce que la surface de base qui sera la seule utilisée dans la position collimatée soit suffisante.

3/ Choix de l'épaisseur.

Elle intervient en modifiant l'absorption des énergies élevées et la proportion d'effet photoélectrique dans l'interaction primaire d'un photon γ avec le cristal. Comme l'absorption totale, cette proportion augmente avec l'épaisseur (pour une énergie donnée). Pour une épaisseur de 10 cm, l'absorption du cristal n'est plus que de l'ordre de 75 p. 100 vers 1,6 MeV or la détection doit être possible jusqu'à 3 MeV. Le rapport du comptage dans le pic au comptage total pour une source diffuse avec cette épaisseur varie entre 0,1 et 0,6 environ suivant l'énergie.

Nous avons considéré que cette valeur était optimum. Au-delà, on élève par trop le coût du cristal et le bruit de fond du détecteur (cf. travail de Miller sur le rapport signal/bruit en fonction de l'énergie pour le NaI (T1) [27]).

Pour obtenir une surface sensible de l'ordre de 1 200 cm^2 comme indiqué au paragraphe précédent, le diamètre du cristal doit être de 20 cm environ. La surface de base dans le cas du cristal collimaté est alors de 315 cm^2 et permet l'examen dans de bonnes conditions des sources autres que le corps humain.

Nous montrerons, chapitre 7, à titre d'exemple, la diminution de précision entraînée par l'emploi d'un cristal de diamètre plus faible et de même épaisseur. En revanche, si on envisage pas la détection d'émetteurs d'énergie élevée, il est possible de réduire l'épaisseur du NaI (T1) utilisé.

3.3 - CARACTERES DE L'ELECTRONIQUE ASSOCIEE.

Les scintillations sont vues par un ou plusieurs photomultiplicateurs dont les circuits d'anode sont adaptés pour délivrer des impulsions de forme convenable pour attaquer le sélecteur d'amplitude choisi. La faible activité des sources étudiées élimine tout risque d'empilements tandis que la grande inertie thermique du montage diminue beaucoup les risques de dérive avec la température [28]. Un amplificateur a gain variable est en général incorporé sur le circuit. Cet amplificateur doit être peu sensible aux surcharges dues aux impulsions de rayonnement cosmique, qui produisent des impulsions, dans les gros scintillateurs utilisés, correspondant à environ 50 MeV.

En ce qui concerne le sélecteur, nous devons pour ne pas perdre d'informations, explorer à chaque instant l'ensemble du domaine d'énergie ce qui impose un sélecteur multicanaux dont il existe de nombreux types aux performances très variées. Le choix de l'appareil peut être fait suivant plusieurs critères :

---

(1) Dans une deuxième version, les détecteurs sont disposés sur une couronne entourant le sujet et pouvant se déplacer le long de son axe.

1/ Rapidité du sélecteur (ou temps d'analyse d'une impulsion).

Les sélecteurs sont munis d'un dispositif de "temps mort" qui rend aveugle l'appareil pendant l'analyse d'une impulsion. Il en résulte une perte de comptage Δn donnée par [29] :

$$\Delta n = n_{réel} - n_{compté}$$

avec, en appelant n_c et n_r les taux de comptage apparents et réels, :

$n_c = n_r e^{-n_r t}$ (t : temps mort cumulatif c'est-à-dire déclenché chaque fois qu'il se présente une impulsion)

$n_c = \frac{n_r}{1 + n_r t}$ (t : temps mort non cumulatif c'est-à-dire non déclenché s'il se présente une une impulsion quand le sélecteur est déjà bloqué).

Les sélecteurs les plus lents pour lesquels t est de l'ordre de 500 μ s conviennent pour notre problème. (Perte de comptage de l'ordre de 5 p. 100 pour 100 coups/seconde).

Remarque - Certains sélecteurs sont munis d'un dispositif corrigeant automatiquement les temps de comptage des pertes dues au temps mort

2/ Choix du nombre de canaux.

C'est le résultat d'un compromis entre :

- l'obtention d'un taux de comptage par canal suffisant pour que l'importance relative de l'erreur statistique soit faible.

- la perte de résolution apparente due à l'utilisation d'un nombre trop faible de canaux.

Pour un sélecteur donné, la perte de précision relative peut toujours être réduite en groupant les canaux ; quant à la résolution apparente, elle peut se juger d'après la possibilité de discerner un pic d'activité donnée sur un fond continu, la possibilité de distinguer deux pics voisins selon leur activité relative et leur intervalle, ou la précision de la détermination en énergie d'un seul pic.

La résolution du détecteur, donc la largeur à mi-hauteur des pics étant connue, on peut admettre [30] qu'il n'y a pas de perte de résolution importante si cette largeur correspond à au moins 3 canaux tandis que la présence d'un pic peu intense et voisin d'un autre plus intense peut encore être faite pour des activités relatives de l'ordre de 1/4 et un intervalle correspondant à 1/2 canal si la largeur à mi-hauteur correspond à un seul canal [31].

On voit qu'un sélecteur ayant un petit nombre de canaux sera préférable si le détecteur utilisé est un plastique (mauvaise résolution) mais que le nombre de canaux aura avantage a être plus grand si on utilise les récents montages NaI (T1) dont la résolution est de l'ordre de 9,5 p. 100 sur le ^{137}Cs[1]. Nous nous sommes servis au début de cette étude d'un sélecteur à 25 canaux qui était le seul existant sur le marché français lors de la construction de l'appareil et qui convenait parfaitement aux résolutions d'environ 20 p. 100 obtenues primitivement. L'amélioration actuelle des montages oblige, si on veut en bénéficier, à diminuer l'étendue du spectre observé par les 25 canaux et en dehors des appareils réalisés en vue du contrôle rapide des contaminations, il y a avantage à utiliser des sélecteurs plus récents par exemple à 60 ou à 100 canaux.

3/ Facilités d'utilisation.

En conclusion, l'examen de l'ensemble des données du problème nous a montré que les options offertes étaient nombreuses. C'est le but poursuivi qui guide le choix car il serait très difficile et en tous cas très onéreux d'envisager un appareil universel.

Nous décrivons en détail au chapitre suivant les réalisations que nous avons effectuées dans le but de réaliser un appareillage aussi simple et peu encombrant que possible capable de déceler et de mesurer les contaminations internes chez l'homme au niveau des C. M. A.

---

(1) La résolution varie avec la racine carrée de l'énergie ; il en résulte que l'emploi d'un amplificateur logarithmique serait préférable puisque pratiquement un pic photoélectrique serait couvert par le même nombre de canaux quelle que soit son énergie. L'usage a cependant consacré l'amplificateur proportionnel plus répandu et qui facilite les étalonnages en énergie.

IV

DESCRIPTION DES RÉALISATIONS EFFECTUÉES

4.1 - LES ENSEMBLES MECANIQUES ET LE DETECTEUR

4.1.1 - Montage d'essai.

Etant donné le but poursuivi, le blindage réalisé devait être minimum tant en épaisseur qu'en dimension. L'étude précédente nous ayant montré qu'un blindage par 5 cm de plomb pouvait être envisagé, nous avons d'abord effectué un montage d'essai représenté figures 5 et 15 (page 39). La protection a été réduite en blindant le dessus de l'appareil uniquement dans la région du détecteur (1).

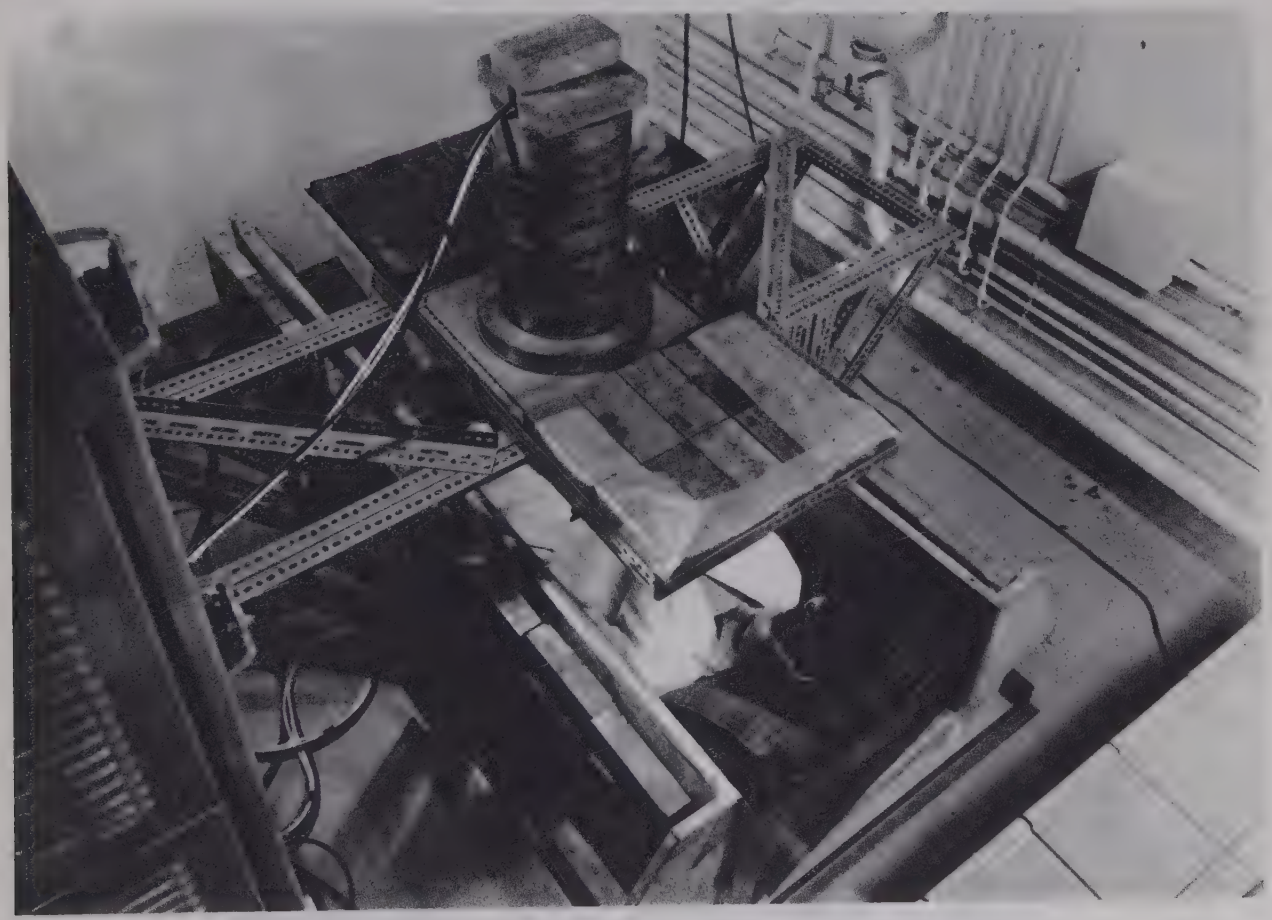


Fig. 5 - Spectrographie gamma pour corps humain
Appareil n° 1 : Prototype de laboratoire après adjonction d'un complément de blindage

---

(1) Si on ne considère pas le rayonnement cosmique (irréductible par blindage) le rayonnement parasite ne provient que dans une proportion faible de la direction du zénith.

Cet ensemble a permis

1/ De montrer qu'une protection limitée à 5 cm de plomb était utilisable (réduction du mouvement propre)

2/ De vérifier que la taille du cristal choisi (NaI (T1) ϕ 20 cm e 10 cm) permettait un rendement de détection suffisant

3/ De montrer la nécessité d'une protection du toit et des extrêmités de l'appareil (pour éviter la rétrodiffusion sur la source vers le détecteur des rayonnements extérieurs - voir chapitre 5).

4.1.2 - L'appareil type "Genève".

L'appareil n° 2, qui bénéficie de l'expérience acquise avec le précédent a été exposé à Genève en 1958 pendant la 2ème Conférence Internationale sur les Applications Pacifiques de l'Energie Atomique sous les auspices de l'ONU (exposition scientifique). C'est principalement cet appareil qui, après quelques modifications de détail a servi pour cette étude.

La figure 6 montre une vue générale de l'installation, la figure 7 en présente la coupe schématique longitudinale.

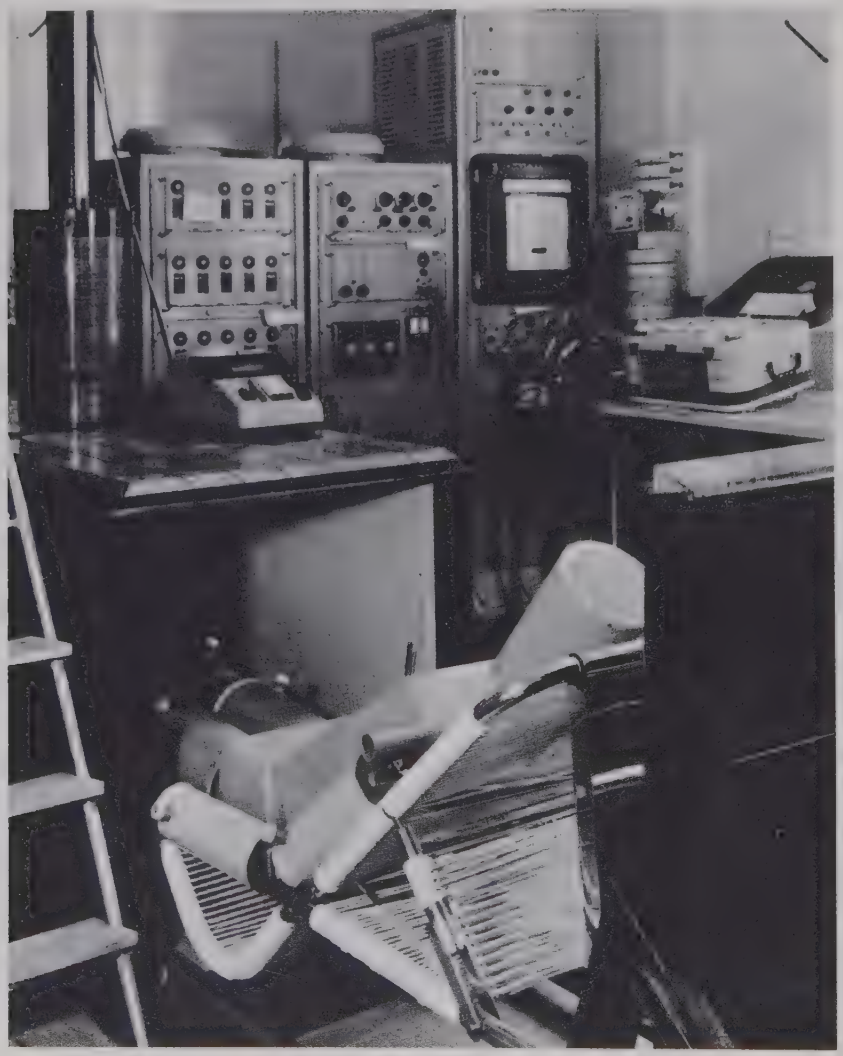
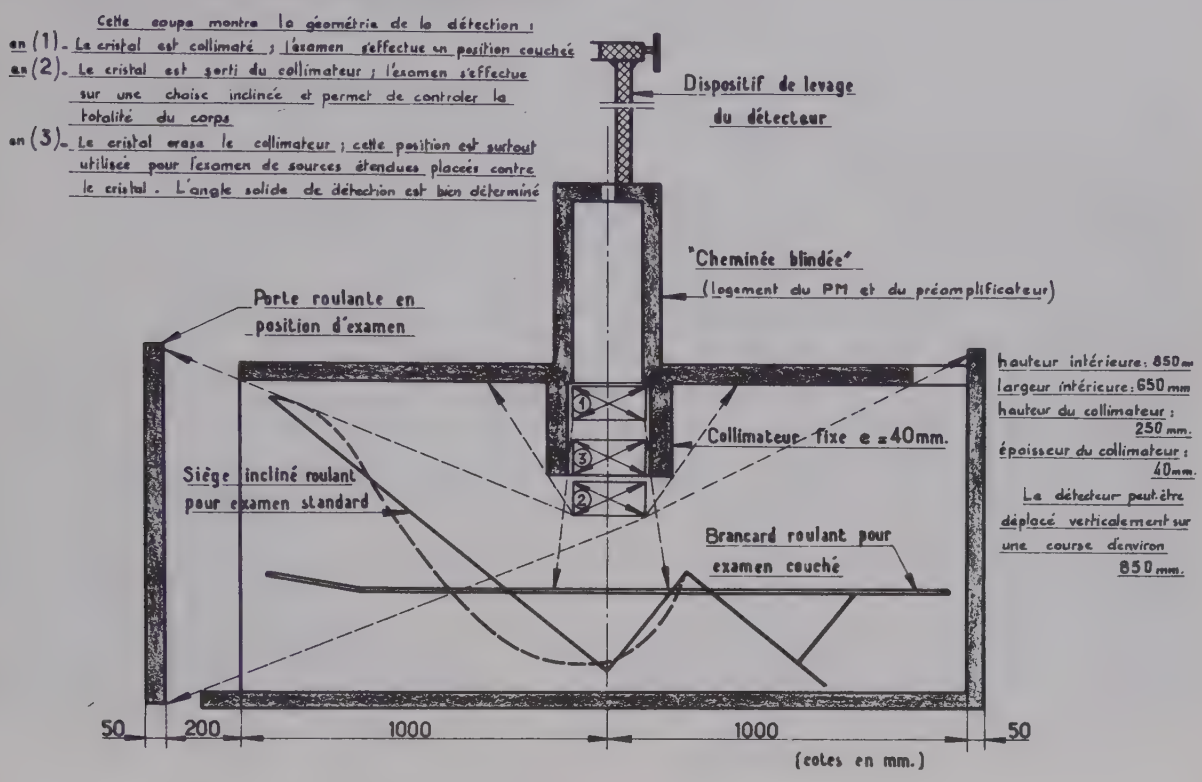


Fig. 6 - Spectrographie gamma du corps humain
Vue générale de l'installation n° 2 ("Genève") après modifications
(remarquer l'installation suiveuse de l'activité gamma ambiante
et le mannequin servant aux étalonnages)

Fig. 7 : SPECTROMETRIE GAMMA DU CORPS HUMAIN : Installation N°2 (type "Genève")

COUPE LONGITUDINALE DE LA PROTECTION



Le blindage est construit en briques à chevrons du standard C.E.A. : épaisseur 5 cm ; alliage de plomb à 10 pour 100 d'antimoine dont nous avons contrôlé la radioactivité avant l'utilisation. Les dimensions intérieures de l'enceinte sont :

longueur 2,2 m - largeur 0,65 m - hauteur 0,85 m

il est surmonté par une "cheminée" de 5 cm d'épaisseur en plomb où sont logés le tube photomultiplicateur et le préamplificateur.

Nous avons vérifié que les dimensions choisies sont suffisantes pour diminuer fortement la rétrodiffusion vers le détecteur des rayonnements issus de la source : dans les examens du corps humain, le cristal est toujours à une distance du blindage comprise entre 20 cm (distance latérale) et 45 cm (distance verticale).

L'étude des spectres obtenus avec une source ponctuelle de ^{137}Cs montre que, dans ces conditions, la rétrodiffusion est négligeable lorsque la source est à plus de 15 cm du blindage et reste faible pour les distances source-paroi supérieures à 5 cm (à 5 cm la hauteur du front Compton aux énergies du pic de rétrodiffusion est environ double de ce qu'elle est pour 15 cm ; mais avec un gros cristal, ce comptage est encore inférieur au quart de celui obtenu pour le pic photoélectrique).

Or, nous verrons au chapitre 7, avec la position d'examen choisie, que la contribution au comptage des parties externes du corps humain proches des parois est très faible.

L'appareil se ferme par une porte roulant sur voie ferrée. (Sur cette voie roulent également les chariots d'examen). Nous avons maintenu quelques ouvertures destinées à l'observation du sujet et à rendre plus agréable le séjour dans l'appareil).

La protection est doublée intérieurement par 1,5 mm d'acier inoxydable pour absorber le rayonnement du Ra D (γ de 47 keV et β très mous) isotope du plomb de période 19 ans, et aussi pour rendre les nettoyages plus aisés.

On a placé au milieu et en haut de l'appareil un cylindre vertical en plomb de 4 cm d'épaisseur et 25 cm de hauteur à l'intérieur duquel le système détecteur peut être déplacé. Ce cylindre joue le rôle d'un collimateur et on utilise trois positions pour le détecteur (figure 7).

1/ Cristal sorti.

Un siége spécial permet l'examen de l'ensemble du sujet. (La position, modifiée en cours d'étude, sera décrite au chapitre 7).

2/ Surface inférieure du cristal arasant l'ouverture du collimateur.

Cette position est utile pour l'examen de sources autres que le corps humain. (Nous montrerons au chapitre 6 que la réponse du détecteur est beaucoup plus uniforme dans cette position).

3/ Cristal remonté à l'intérieur du collimateur.

On peut alors étudier des zones limitées du corps d'un sujet allongé sur un brancard.

Remarques -

Les deux dernières positions ont l'avantage supplémentaire d'améliorer considérablement la protection des faces latérales du détecteur contre les rayonnements parasites extérieurs.

Elles permettent également de pratiquer, à l'aide du siége spécial, un examen de la presque totalité du corps humain, en éliminant cependant du champ du cristal la tête et les mains dont la décontamination totale externe est difficile.

Le poids de cet ensemble, y compris celui du bâti mécanique lui servant de support, est de 6,5 tonnes environ et peut être facilement réparti sur une surface de 25 m² ce qui permet de l'installer sur n'importe quel sol.

4.1.3 - Les versions industrielles de l'appareil.

Plusieurs appareils, construits par l'industrie sont dérivés de l'installation n° 2. Dans ces appareils l'enceinte de mesure est complètement close et le collimateur mobile. La figure 8 montre une vue générale d'une de ces installations.

Nous avons équipé un laboratoire mobile de l'une de ces enceintes ; cette réalisation (rendue possible grâce au type de protection choisi) est -à notre connaissance- la seule existant de ce type. L'appareil est monté sur remorque équipée de tous les accessoires permettant une campagne de mesures indépendamment de toute aide extérieure. Il permet notamment des contrôles de contaminations sur des populations en cas d'accident radioactif ou chez des travailleurs utilisant des radioéléments dans des centres dont l'importance ne justifie pas la construction d'un laboratoire permanent. Il permet enfin l'étude de la radioactivité naturelle de la population dans les hopitaux des grandes villes par exemple.

Ce laboratoire mobile dont on trouvera des photographies figures 9 et 10 a été exposé au Congrès International d'Electronique Médicale à l'UNESCO à Paris en 1959 et a depuis effectué plusieurs campagnes de mesure, notamment en Afrique.

4.2 - LES MONTAGNES ELECTRONIQUES ET LES APPAREILS ANNEXES.

4.2.1 - Ensemble d'une installation.

On distingue sur tous les appareils réalisés :

- Une voie principale
- Une voie suiveuse
- Des appareils annexes (éventuellement).

1/ Voie principale.

Elle comprend :

- l'ensemble détecteur (cristal + PM) placé dans l'enceinte blindée

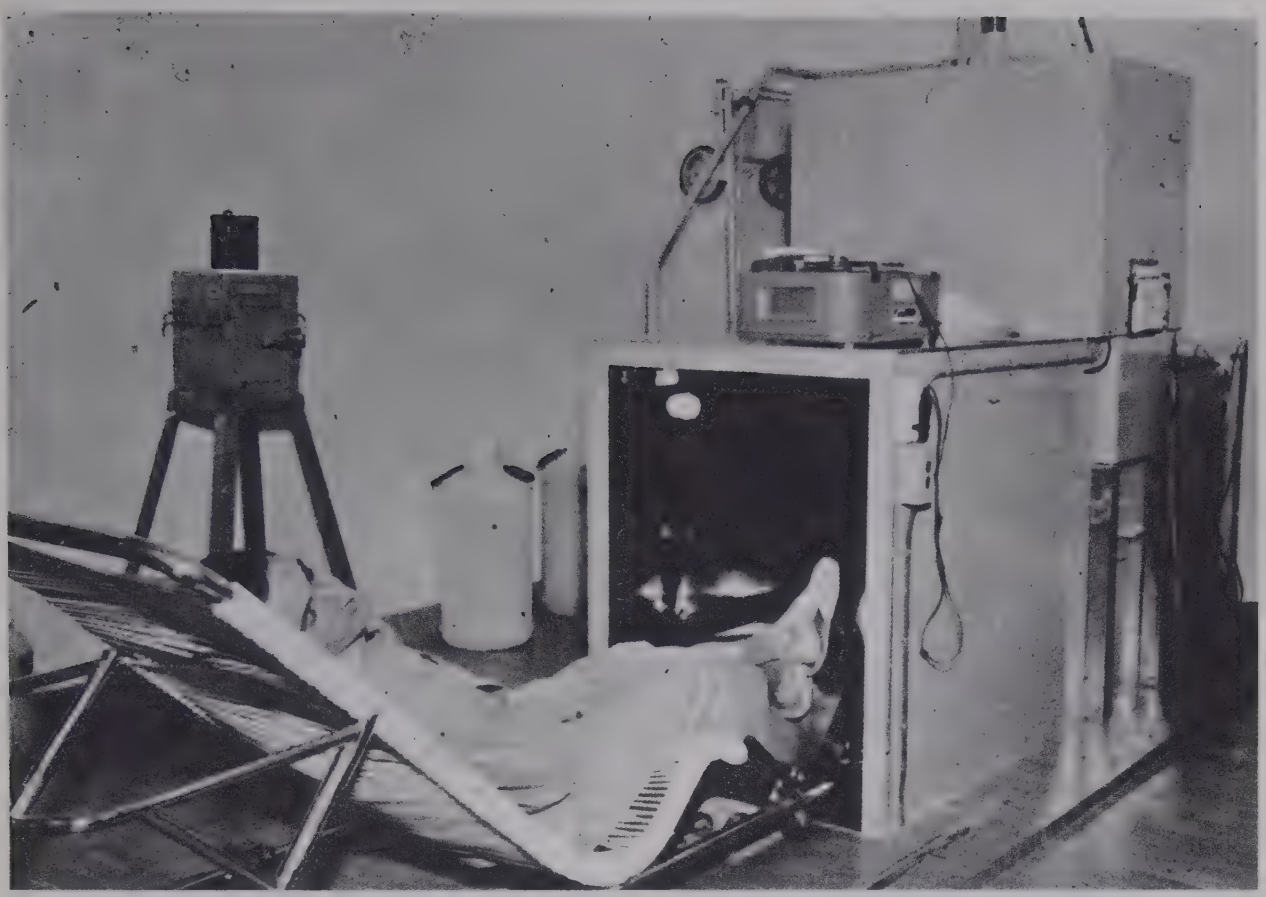


Fig. 8 - Vue générale de l'installation n° 4

- un préamplificateur permettant de transporter les impulsions délivrées par le détecteur le long de plusieurs mètres de cable coaxial.
- un amplificateur proportionnel à gain variable permettant d'adapter la tension de crête des impulsions à la plage d'exploration du sélecteur.
- les alimentations notamment la THT pour le P. M.
- les dispositifs de lecture (oscilloscope, machine imprimante, etc ...)
- une commande automatique du temps de comptage.

2/ Voie suiveuse.

Elle est destinée à avertir des fluctuations du rayonnement parasite telles qu'elles sont détectées par la voie principale. Les fluctuations obligent à refaire le spectre du bruit de fond et peuvent devenir importantes par suite du blindage mince utilisé.

La voie suiveuse comporte :

- un détecteur de même nature que le blindage principal et blindé de façon similaire. Les dimensions du cristal et de sa protection sont fortement réduites par rapport à celles du détecteur principal.
- un ensemble alimentation-amplification en général simplifié par rapport à la voie principale.
- un dispositif de comptage ou d'enregistrement éventuellement commandé par la même "horloge" que la voie principale (1).

---

(1) L'installation n° 2 dont nous nous sommes servis est la plus complète : Le suiveur permet l'enregistrement permanent de l'activité γ ambiante en même temps que celle de la direction du vent -principal responsable des fluctuations. De plus, la pendule qui commande le sélecteur principal commande en même temps une échelle de comptage ayant les mêmes seuils en énergie que le sélecteur.

Fig. 9 - Spectrographie gamma du corps humain : installation n° 3
Vue extérieure du véhicule laboratoire

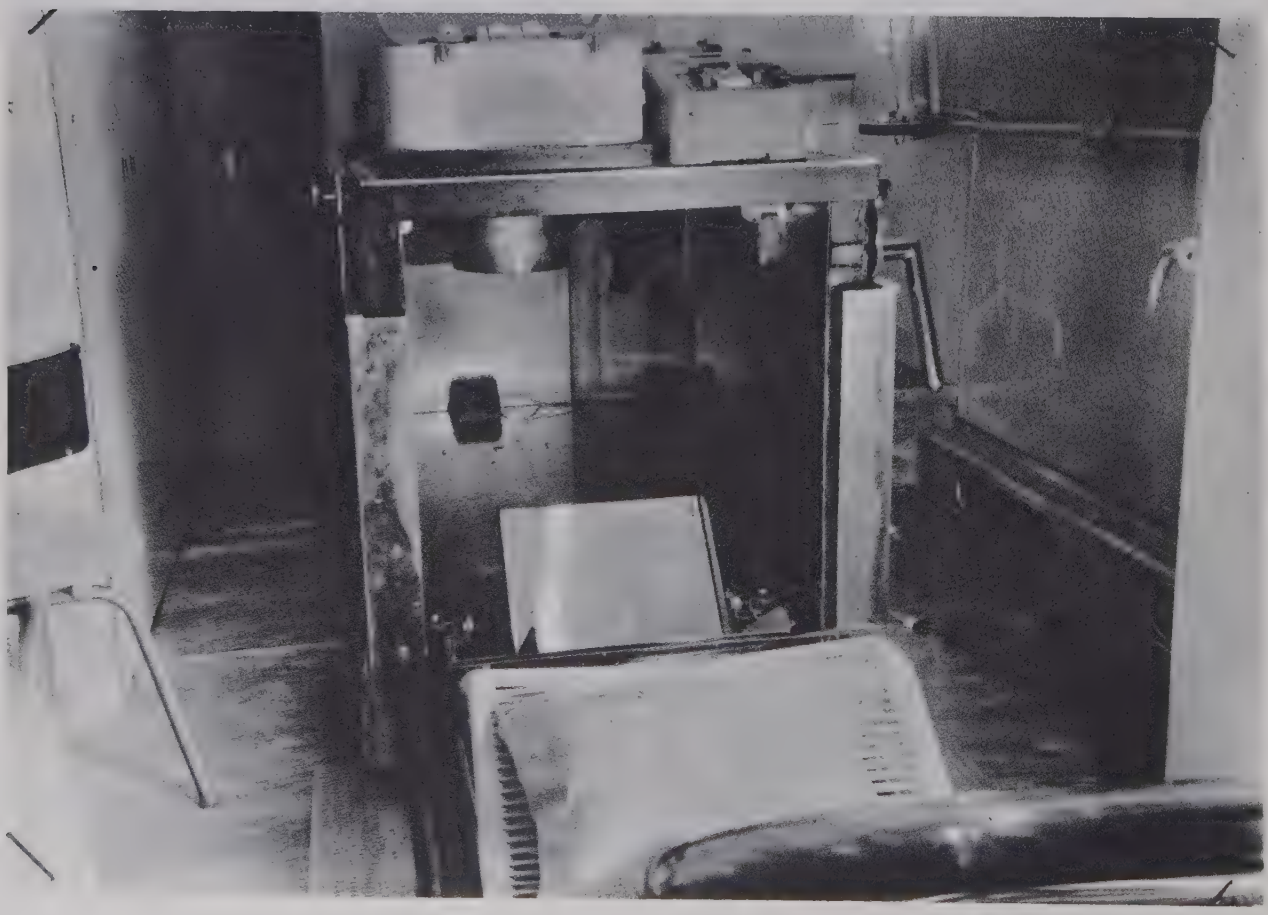


Fig. 10 - Spectrographie gamma du corps humain : installation n° 3 (mobile)
Vue intérieure de l'enceinte blindée (volets de collimation effacés)

3/ Appareils annexes.

Nous groupons dans cette rubrique les appareils dont les indications peuvent faciliter l'exploitation de l'installation, l'interprétation des résultats ou permettre de prévoir l'évolution du rayonnement parasite.

Citons : Enregistreur d'aérosol radioactif (babar EAR)

Girouette

Magnétophone, interphone, etc .....

4.2.2 - Description de l'installation n° 2.

Nous décrivons ci-dessous les points originaux de l'installation n° 2. La figure 11 en donne un schéma d'ensemble : version de laboratoire, elle comporte les appareils indiqués au paragraphe précédent.

La voie principale peut être utilisée avec l'un ou l'autre des sélecteurs d'amplitude à 25 canaux ou à 200 canaux (ce dernier muni d'un "chronomètre d'efficacité" permettant la correction automatique du temps mort). Cependant, c'est principalement du premier appareil que nous nous sommes servis. La voie suiveuse est munie d'un amplificateur proportionnel et ses indications sont enregistrées en continu et comptées par une échelle pendant le temps de mesure sur l'installation principale.

1/ Le détecteur.

Jusqu'à fin 1960 nous avons utilisé le montage schématisé figure 12.

Il comprend :

- Un NaI (T1) ϕ 20 cm, h 10 cm à boitier en cuivre électroniquement pur, d'épaisseur 1 mm, fenêtre en quartz.

- Un photomultiplicateur type 54 AVP. Diamètre de photocathode 110 mm sélectionné du point de vue sensibilité et homogénéité de photocathode. Cablage comme indiqué sur la figure. Résistance d'anode 100 kΩ. Montage sur le cristal avec pose d'un diffuseur en téflon sur la partie non couverte par la photocathode de la fenêtre du cristal.

Ce détecteur est utilisé avec des THT comprises entre 1200 et 1400 V et fournit des impulsions d'environ 35 mV/MeV.

En 1961, nous avons mis en place un détecteur aux performances améliorés (voir chapitre 6). Le montage schématisé figure 13 comprend :

- un cristal NaI (T1) ϕ 20 cm, h 10 cm à boitier en acier inoxydable d'épaisseur environ 0,3 mm et 3 fenêtres en verre à très faible teneur en potassium aux emplacements des tubes photomultiplicateurs (diffuseur en magnésie en dehors de ces fenêtres).

- 3 photomultiplicateurs Dumont n° 6363, diamètre de photocathode 7,5 cm.

- cablage comme indiqué sur la figure (avec potentiomètre d'équilibrage des gains et de focalisation dans les 3 P. M.).

2/ L'amplificateur.

Nous utilisons, soit un amplificateur type APT 2 (AME fabriquant), soit un amplificateur type TAP 100 (E. L. A. fabriquant).

La bande passante est de l'ordre de 2 MHz et les impulsions obtenues, compte tenu de la mise en forme au circuit d'anode du photomultiplicateur, ont une durée de 10 μs environ (temps de montée inférieure à 2 μs). Le bruit, mesuré en sortie de l'amplificateur, est de l'ordre de 500 mV crête à crête et indépendant du gain.

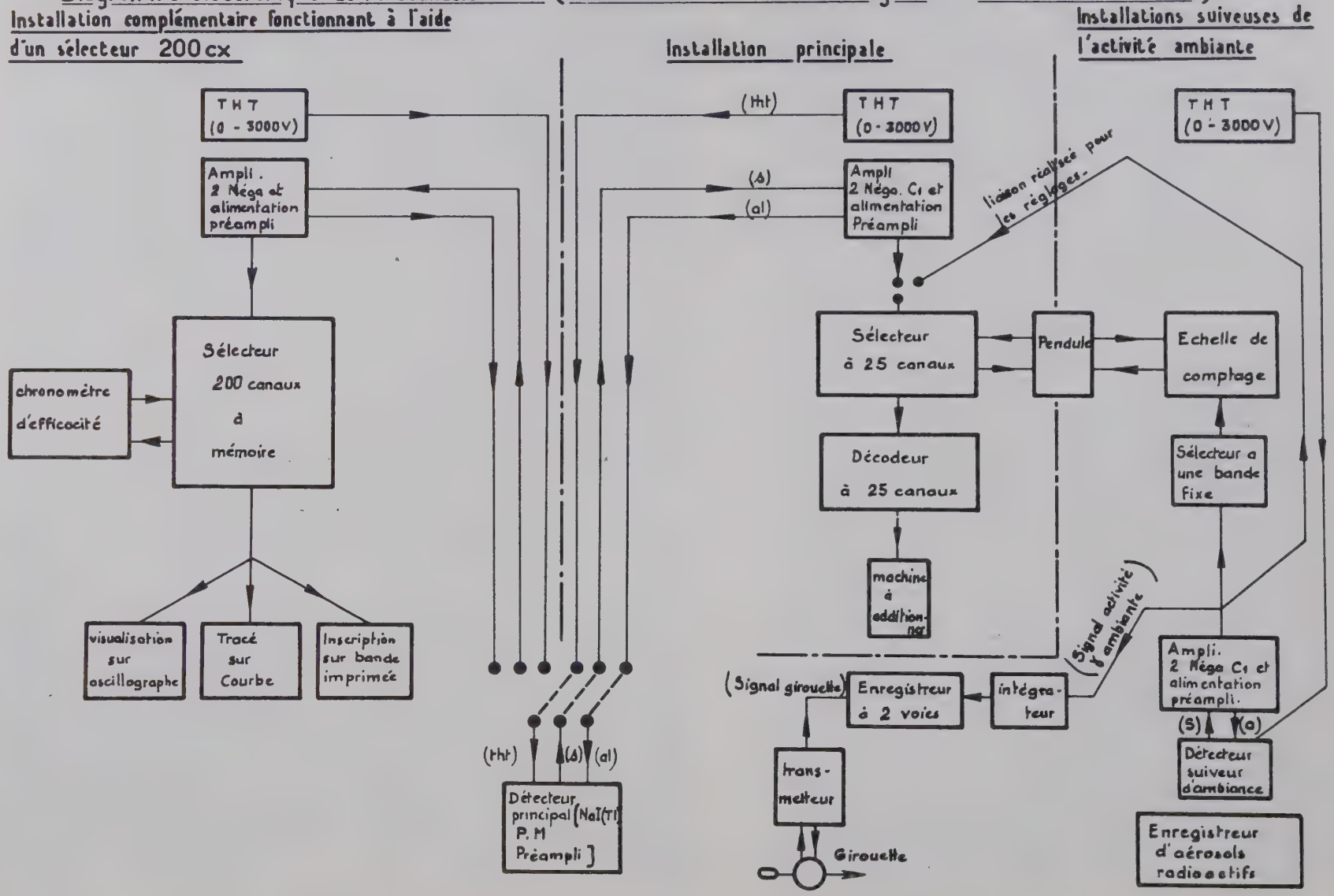
Les amplificateurs, à gain réglable, peuvent délivrer des impulsions dont l'amplitude maximum est 100 volts.

3/ Le sélecteur.

Dans cette étude, nous nous sommes servi surtout d'un sélecteur à 25 canaux (ELA fabriquant) fonctionnant entre 2,2 et 52,2 volts.

Fig.11: SPECTROMETRIE GAMMA DES SOURCES ETENDUES DE FAIBLE ACTIVITE

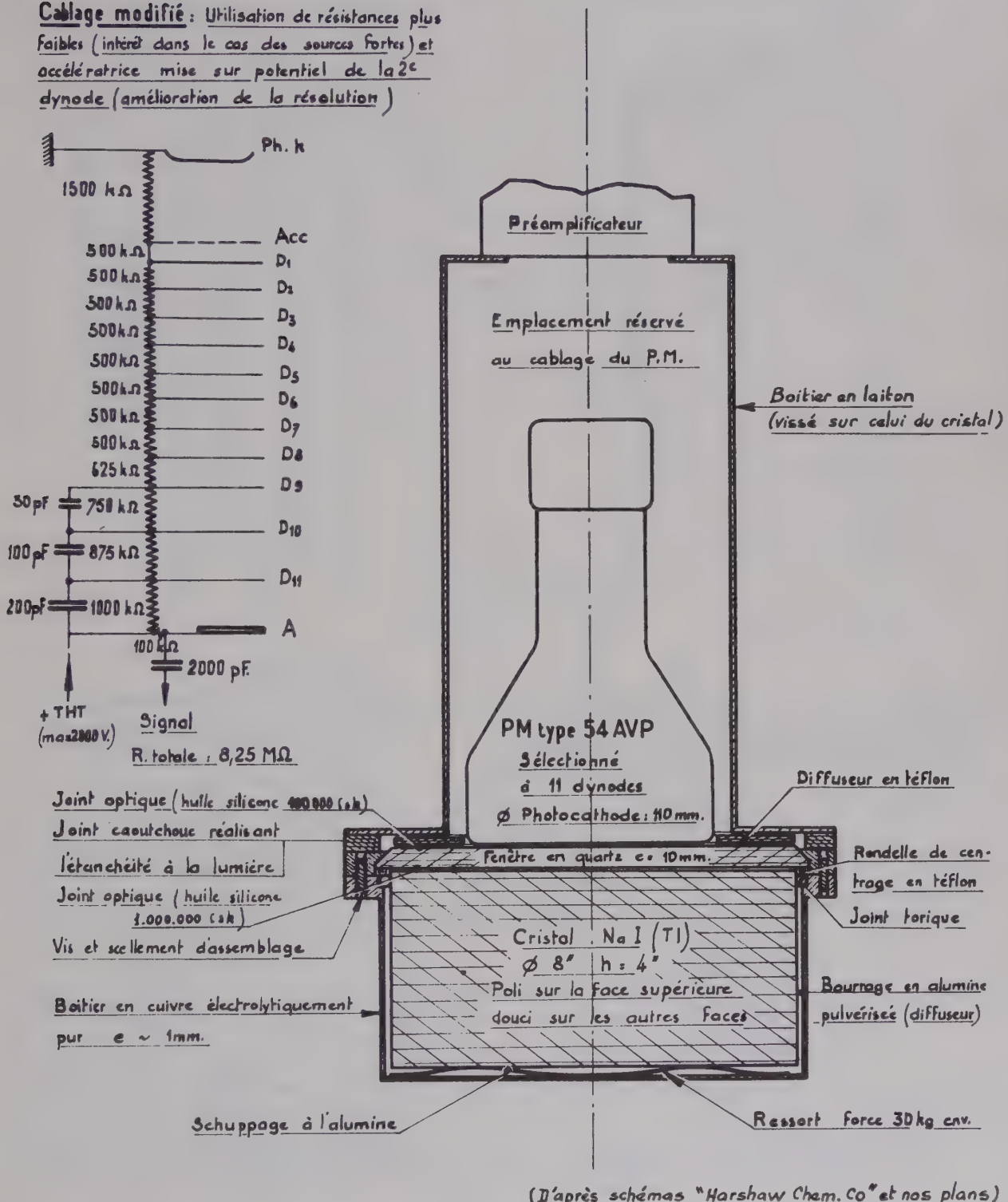
Diagramme électronique de l'installation N°2 (Alimentation sur secteur régulé - Ventilation forcée)



SPECTROGRAPHIE GAMMA DU CORPS HUMAIN

Fig. 12

MONTAGE ET CABLAGE DU DETECTEUR A UN SEUL MULTIPLICATEUR



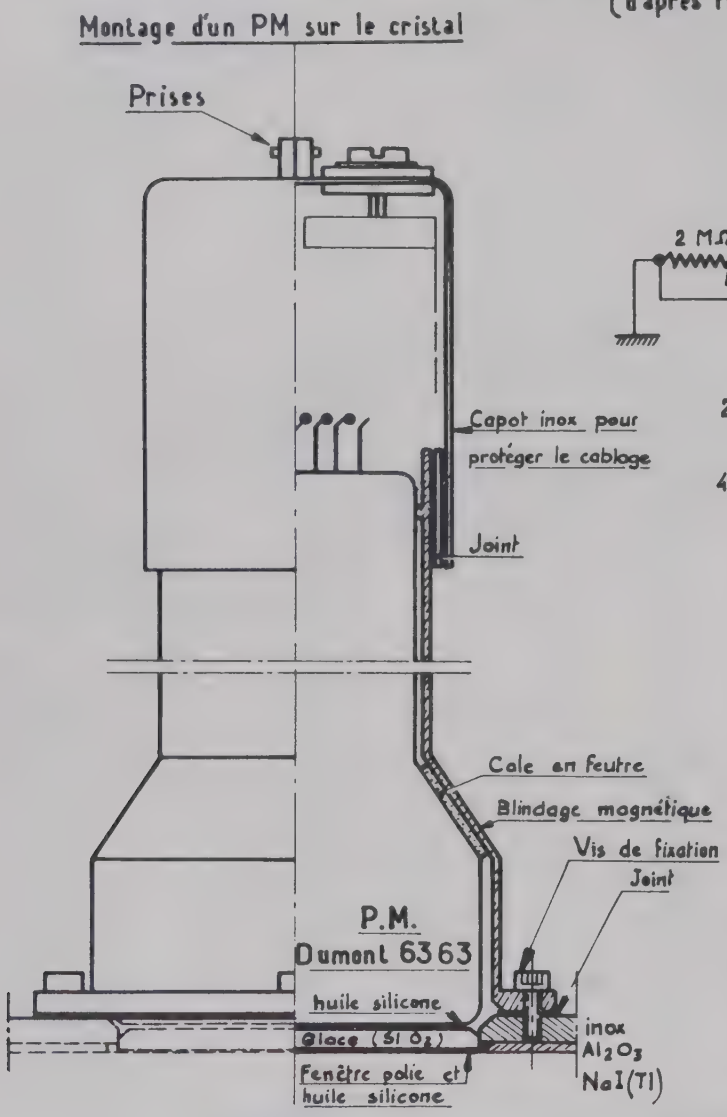
(D'après schémas "Harshaw Chem. Co" et nos plans)

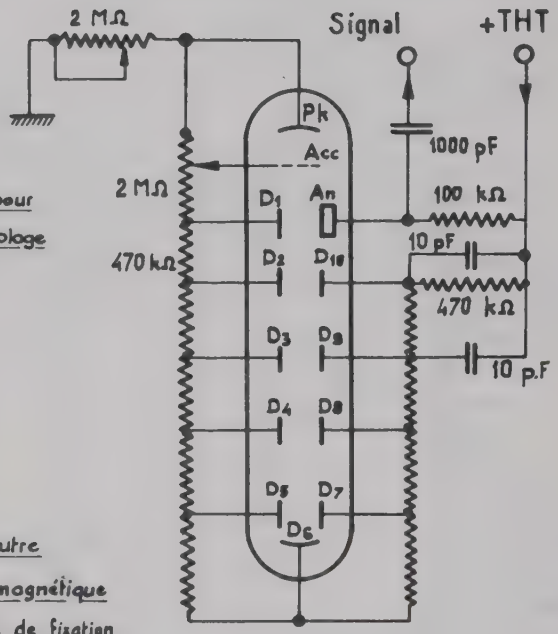
Fig. 13

SPECTROGRAPHIE GAMMA DU CORPS HUMAIN

MONTAGE ET CABLAGE DU DETECTEUR A 3 PHOTOMULTIPLICATEURS

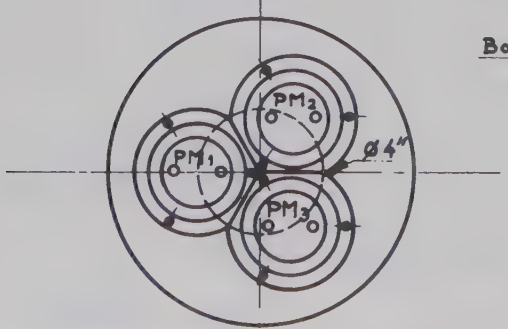
(d'après HARSHAW Chem. Co)





Cablage réalisé

(PM. Dumont, ø PK 3" spécial pour faible bruit de fond : résistances soudées directement. Ce tube peut maintenant être remplacé par le XP 1031 radiotechnique)



Disposition des 3 PM. sur le cristal

(HARSHAW 8" x 4" Monture acier inox e = 0,25mm)

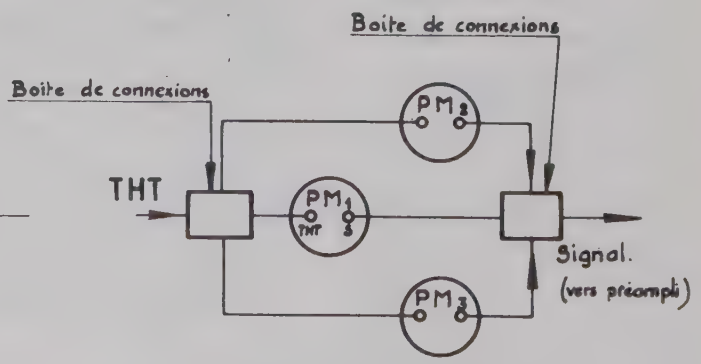
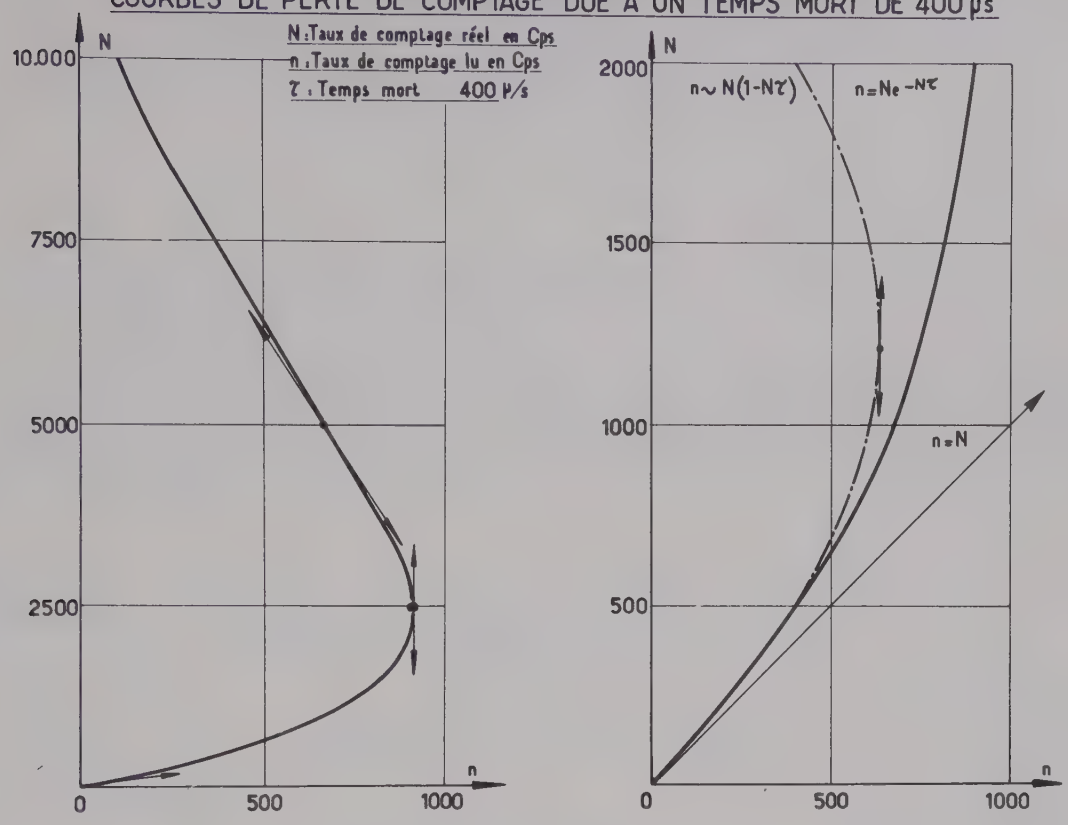


Schéma d'alimentation

Fig. 14 : SELECTEUR A 25 CANAUX

COURBES DE PERTE DE COMPTAGE DUE A UN TEMPS MORT DE 400 µs



La figure 14 donne la courbe du taux de comptage vrai N en fonction du taux de comptage apparent n lu sur ce sélecteur qui fonctionne avec un temps mort cumulatif τ = 400 µs. La courbe est calculée par points d'après la formule :

$$n = Ne^{-N\tau}$$

On voit que le taux de comptage apparent maximum est de 920 coups/s correspondant à 2500 coups/s réels. Pour un taux de comptage apparent donné, il y a deux taux réels possibles ; en pratique il est facile de se rendre compte sur quelle partie de la courbe on se trouve en éloignant la source du détecteur. La courbe montre également que la correction de perte de comptage due au temps mort du sélecteur est de l'ordre de 1,6 p. 100 pour une activité de 40 coups observée en pratique sur un sujet non contaminé.

Ajoutons que les dérives en amplitude restent négligeables pendant le temps d'un groupe de mesures bruit de fond et source (temps total inférieur à 1 heure). Sur une période plus longue -par exemple 24 heures- des dérives de quelques pour-cents peuvent se manifester et l'étalonnage doit être revu quotidiennement. La largeur de canal couramment utilisé est de 65 KeV.

En conclusion, on voit que nos réalisations *différent essentiellement des installations étrangères par l'emploi d'une protection plus mince et de volume relativement réduit* . Nous verrons que nous avons ainsi obtenu pour un coût relativement modeste des appareils aux performances intéressantes permettant, non seulement le contrôle des contaminations (nature et importance) mais aussi des études plus fines. En outre ces appareils peuvent être rendus transportables.

Le détecteur choisi était nécessairement le NaI (T1) pour ses bonnes qualités spectrographiques et la disposition à cristal unique jointe à l'emploi d'un collimateur amovible permet la recherche des zones de localisation et l'utilisation de l'appareil à l'étude d'autres sources que le corps humain, le sélecteur utilisé dépendant de l'application envisagée.

Nous étudions maintenant les performances atteintes par nos appareils.

V

ÉTUDE DU MOUVEMENT PROPRE (1)

5.1 - ETUDE EXPERIMENTALE DU MOUVEMENT PROPRE

5.1.1 - Importance du rayonnement diffusé.

Le montage de laboratoire initial (cf. Paragraphe 4.1) comportait une protection du détecteur par 5 cm en plomb contre le rayonnement direct exclusivement. La figure 15 montre une coupe transversale de l'appareil (enceinte n° 1). Le bruit de fond entre 0,08 et 1,8 MeV était de 30 coups par seconde, ce qui, comparé à l'activité mesurée cristal sans protection, correspondait à un facteur d'atténuation brut (2) moyen de 22.

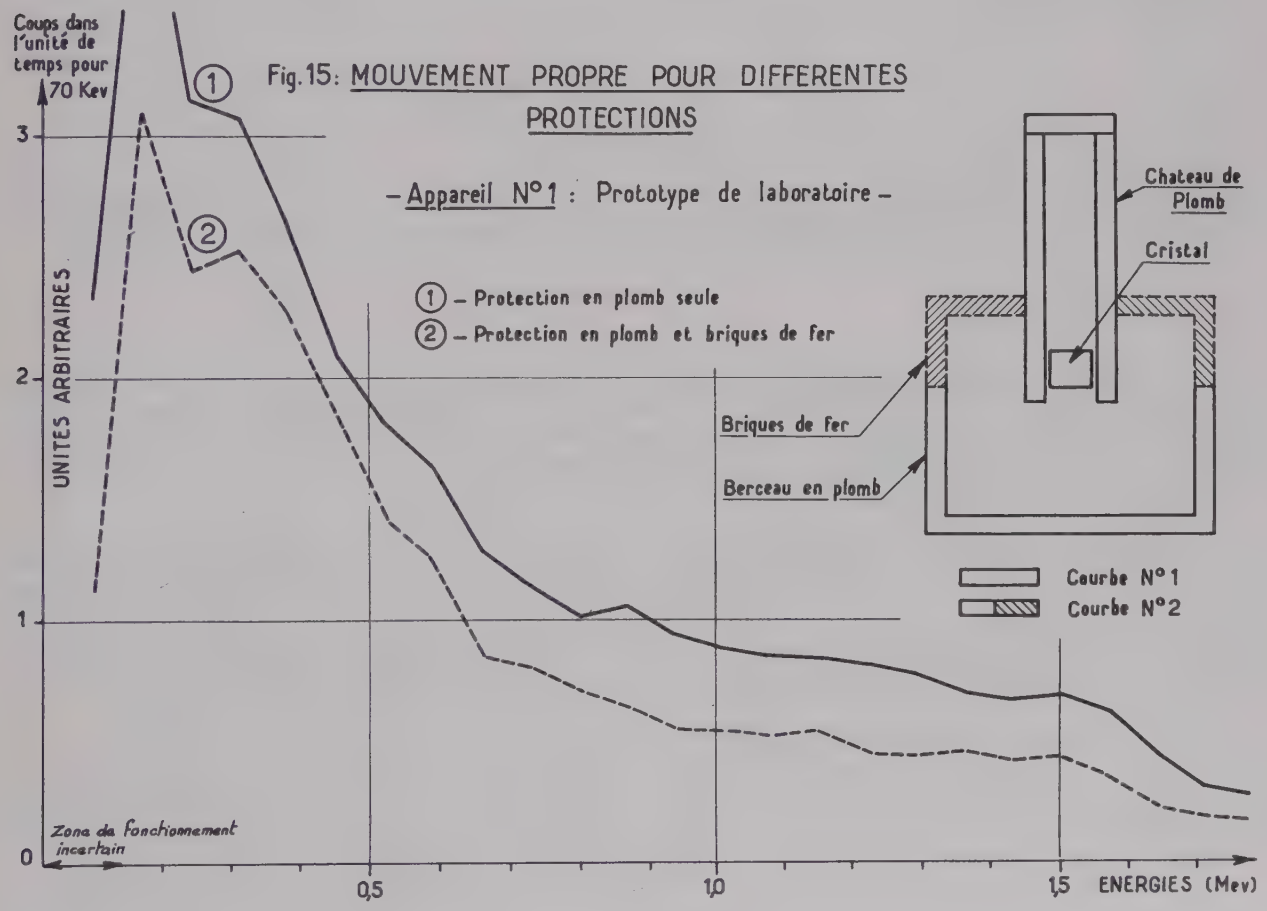


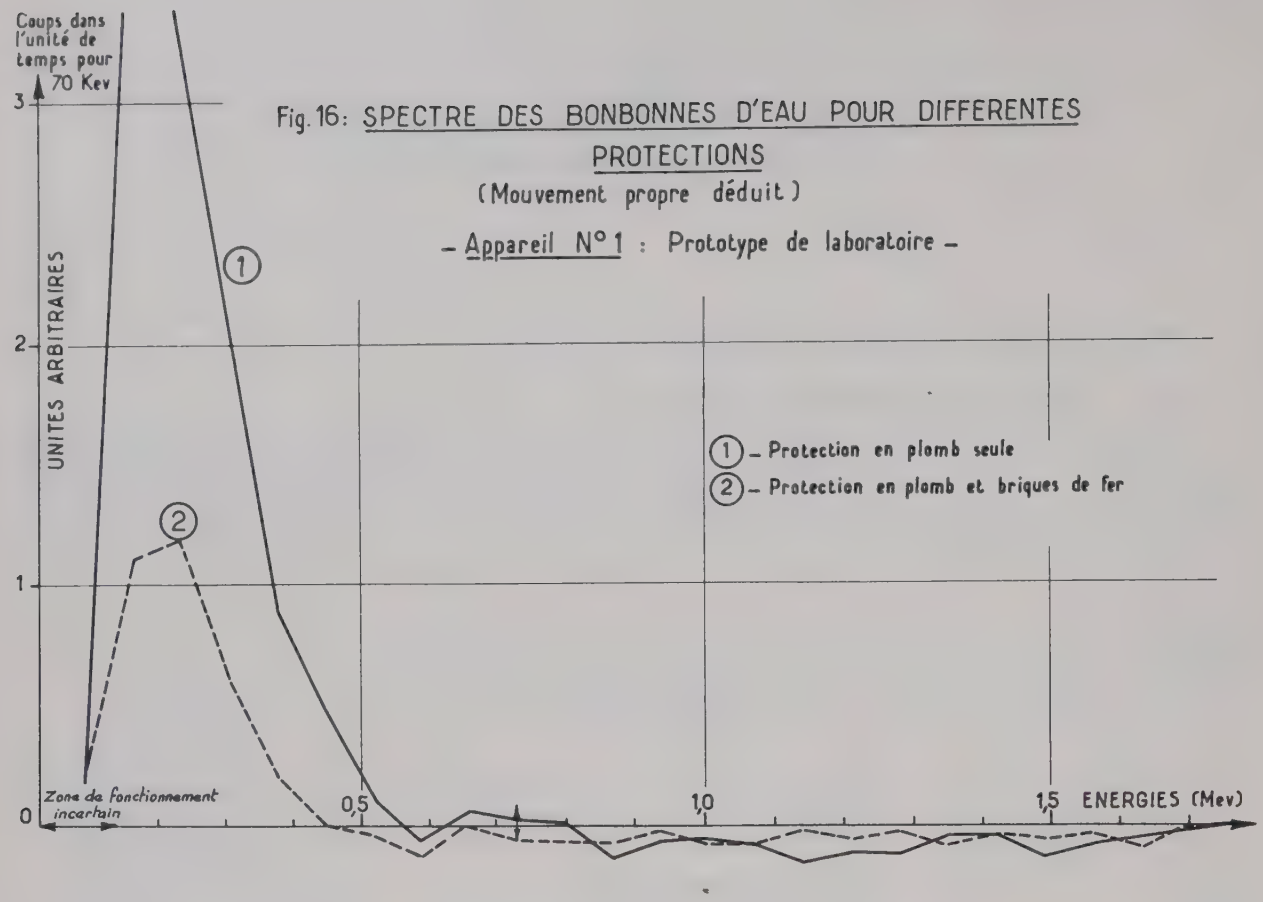
Fig.15: MOUVEMENT PROPRE POUR DIFFERENTES PROTECTIONS

– Appareil N°1 : Prototype de laboratoire –

---

(1) Les résultats présentés dans ce chapitre sont extraits de [32].

(2) Nous définissons le facteur d'atténuation brut comme le rapport du taux de comptage sans protection au taux de comptage avec protection. Le facteur d'atténuation net sera corrigé de l'activité due au détecteur et à la protection.



Cependant, l'introduction d'un grand volume de matière inactive (par exemple 2 bonbonnes cylindriques de 25 litres en polythène remplies d'eau distillée et figurant grossièrement un corps humain), augmentait de 6,5 coups environ le comptage en-dessous de 550 keV. Cette augmentation était due aux rayonnements d'énergies supérieures parvenant sur les bonbonnes par les parties non protégées de l'appareil et diffusée vers le cristal.

La figure 16 (courbe 1) montre le spectre d'une bonbonne obtenu de cette façon. La courbe 2 montre le spectre très réduit obtenu après que la protection ait été complétée sur les côtés et sur le dessus de l'appareil par 5 cm de fer sur une longueur de 50 cm de part et d'autre du détecteur.

Nous avons vérifié que le rayonnement extérieur diffusé par une source du volume d'un corps humain restait négligeable dans l'appareil n° 2 où les ouvertures subsistantes sont plus réduites et plus éloignées du détecteur (cf. paragraphe 8. 3. 2 et figure 31 page 66).

5. 1. 2 - Etude du facteur d'atténuation.

Pour une même valeur du mouvement propre mesuré avec l'installation suiveuse d'ambiance γ , nous avons étudié la réponse du détecteur, celui-ci étant à l'extérieur de l'enceinte de plomb puis à l'intérieur dans deux cas, à savoir :

- la face intérieure du cristal arase l'ouverture du collimateur
- le cristal est en dehors du collimateur.

Les trois spectres correspondants sont reproduits sur la figure 17. Les spectres sont tracés avec deux échelles en ordonnée : de 0 à 200 cps pour le cristal à l'air libre ; de 0 à 5 cps pour les deux autres positions. Les mesures ont été faites en 1 000 secondes. Ces courbes permettent de tracer le tableau résumé suivant :

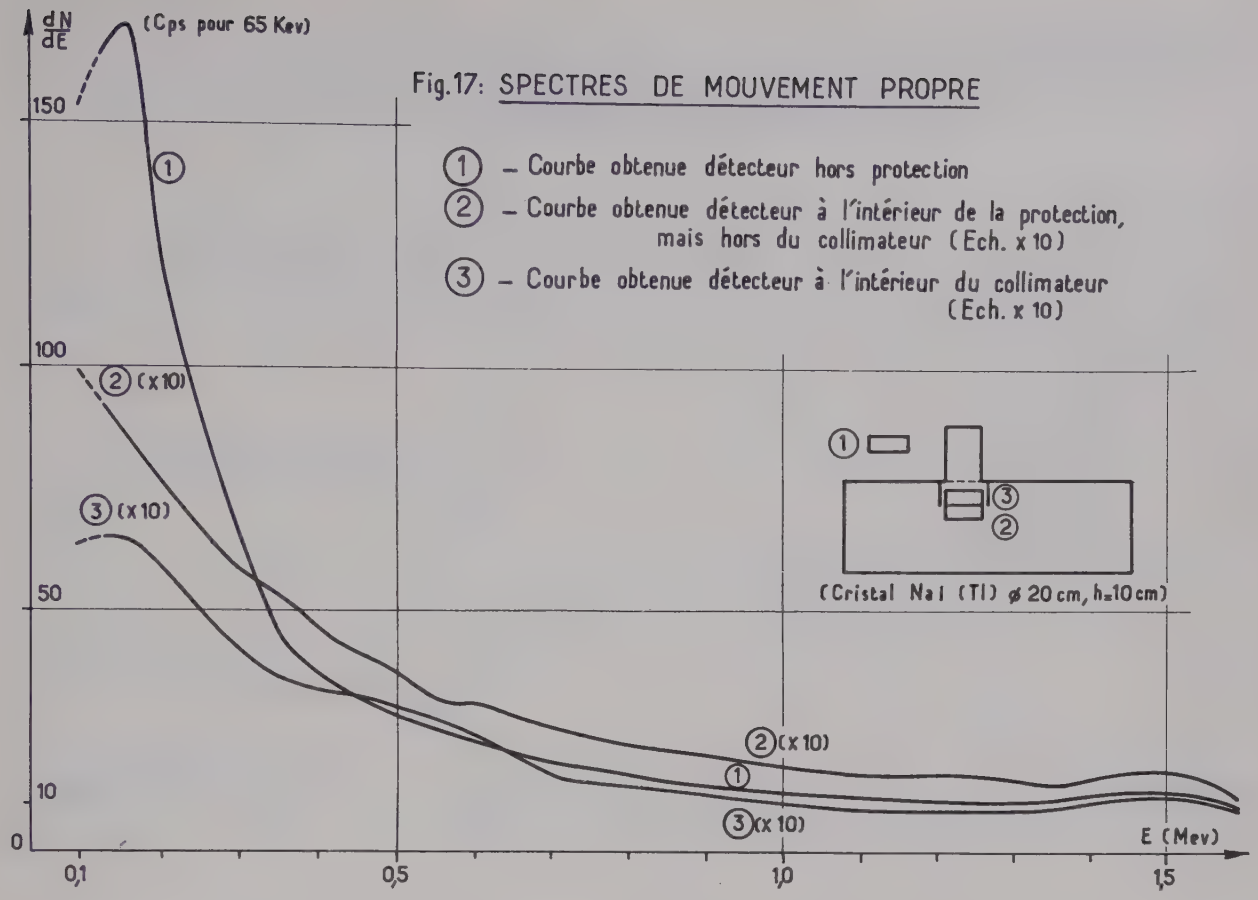


Fig.17: SPECTRES DE MOUVEMENT PROPRE

Tableau du mouvement propre pour différentes énergies (en cps)

Energies	Cristal hors protection	Cristal à l'intérieur de la protection	
		Sorti du collimateur	A l'intérieur du collimateur
0,2 MeV	130	3,9	3,0
0,5 MeV	30	1,8	1,5
de 1 à 1,6 MeV	8	0,75	0,5

Les activités sont indiquées pour une bande d'énergie de largeur 65 keV. On en déduit les facteurs d'atténuation bruts du blindage reproduits figure 18.

On remarque que le collimateur en plomb cylindrique de 4 cm d'épaisseur ne diminue pas le taux de comptage d'un facteur important.

Afin d'apprécier la valeur du taux de comptage irréductible, nous avons fait une mesure dans les conditions suivantes : le cristal est rentré à l'intérieur du collimateur et des briques de plomb de 5 cm d'épaisseur sont placées dessous. Le taux de comptage irréductible est celui obtenu pour l'activité la plus faible observées au suiveur d'ambiance.

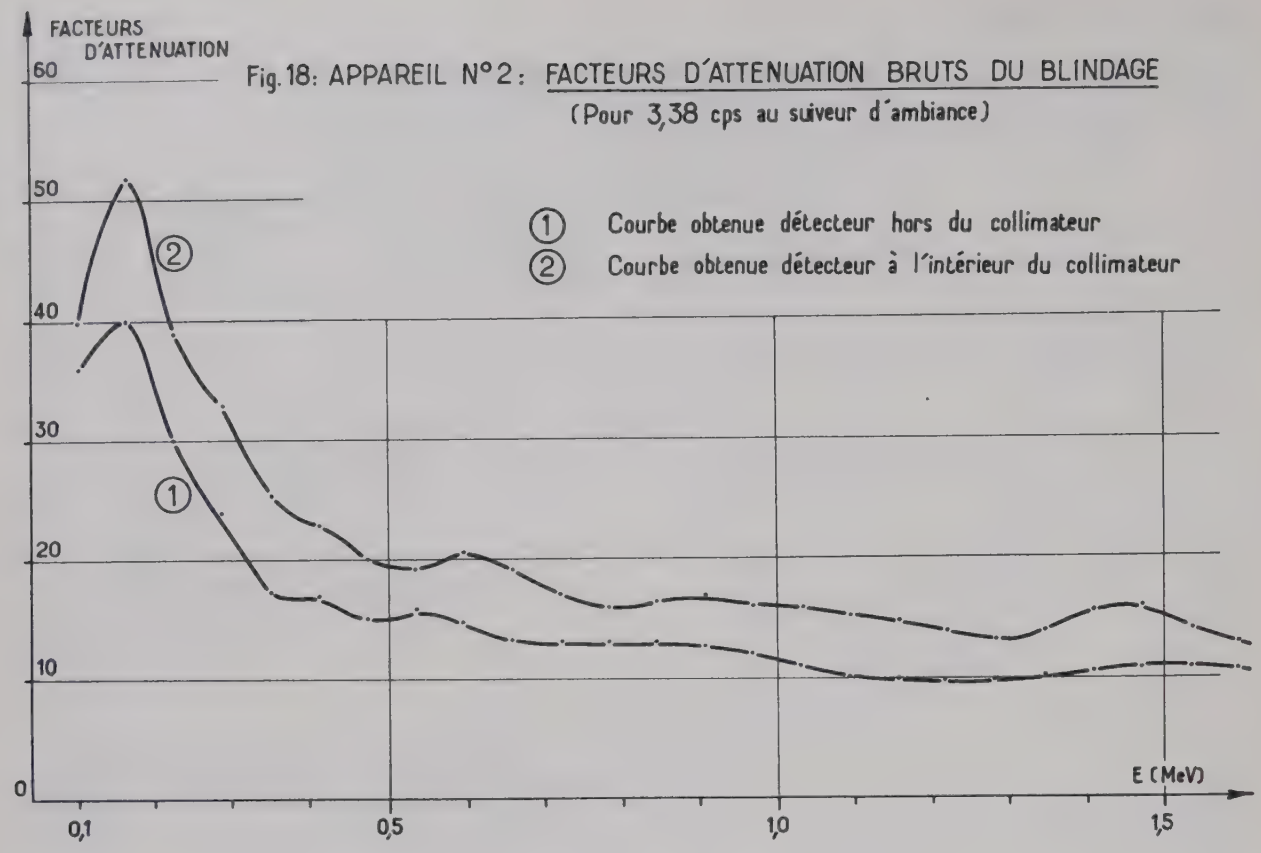


Fig. 18: APPAREIL N°2 : FACTEURS D'ATTENUATION BRUTS DU BLINDAGE
(Pour 3,38 cps au suiveur d'ambiance)

5. 1. 3 - Les composantes du mouvement propre.

Une étude complète dans ce domaine, nécessiterait un appareillage beaucoup plus important que celui dont nous disposons et sortirait du but que nous nous étions proposé. Il nous a cependant paru intéressant de chercher à retrouver certains des résultats obtenus à la suite d'une étude systématique au laboratoire Argonne, en particulier par C. E. Miller et L. D. Marinelli [27] [33] [34].

1/ Contamination du détecteur.

Si on étudie un spectre de mouvement propre on observe un pic très étalé dans la région de 1,5 MeV. Ce pic est du au ^{40}K contenu dans le verre du tube photomultiplicateur, subsistant dans la fenêtre et le boîtier du cristal et surtout existant dans le NaI lui-même comme impureté. La teneur des cristaux NaI (T1) en potassium naturel était primitivement de 20 à 25 p. p. m. Elle est de l'ordre de 10 à 15 p. p. m. pour notre détecteur (1958) et de 4 p. p. m. pour les cristaux actuels [(1)]. La fabrication des verres pour P. M. a suivi des progrès analogues quoique moins grands. Quant à la teneur en potassium d'une fenêtre en silice fondue, on peut espérer qu'elle est du même ordre que celle du cristal.

2/ Le rayonnement cosmique

La mesure de la composante du mouvement propre due au rayonnement cosmique est difficile. On estime généralement que -à nos altitudes- on reçoit de 1 à 2 cpm/cm². Nous avons retrouvé cet ordre de grandeur en étudiant le spectre de l'énergie des particules résultant de l'intéraction des cosmiques (essentiellement des mésons μ) avec notre système détecteur et la protection (figure 19). Ce spectre est obtenu en diminuant la valeur de la haute tension appliquée au P. M. et en diminuant le gain de l'amplificateur.

---

(1) Cette étude a été achevée en utilisant un cristal produit en fin 1960.

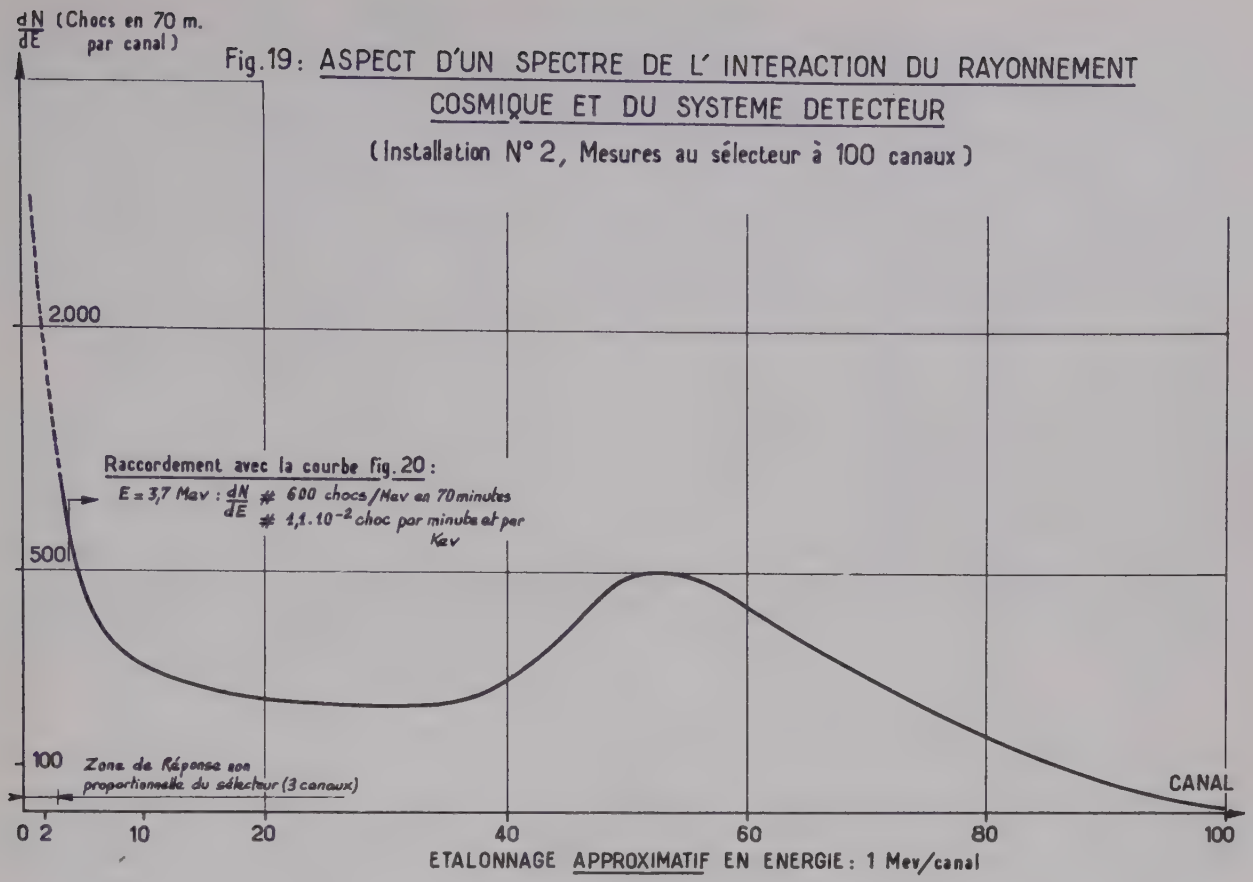


Fig.19 : ASPECT D'UN SPECTRE DE L'INTERACTION DU RAYONNEMENT COSMIQUE ET DU SYSTEME DETECTEUR

(Installation N° 2, Mesures au sélecteur à 100 canaux)

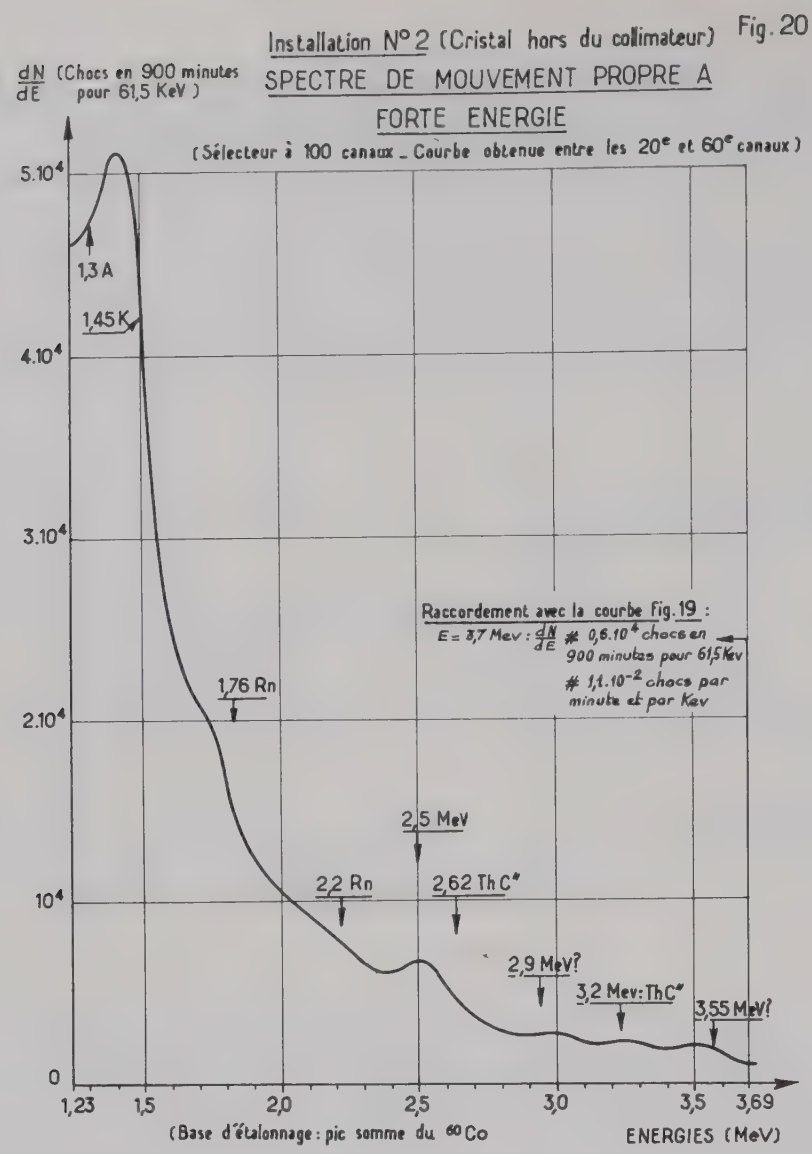
On observe un maximum vers 50 MeV produit par l'interaction directe des mésons. L'aire comprise sous la courbe donne l'ordre de grandeur du flux de particules reçues. On trouve 400 impulsions par minute pour une surface de détecteur de 314 cm² soit environ 1,3 cpm/cm². Le spectre de la contribution au mouvement propre dû aux effets secondaires de l'interaction des cosmiques a été effectué par H. A. May et L. D. Marinelli en pièce blindée avec un cristal de taille voisine du notre (grâce à des installations souterraines et avec des compteurs montés en anticoincidence). Ils ont trouvé un taux de comptage de 2,4 cps de 0 à 1,6 MeV et 2,6 cps de 0 à 2 MeV dont environ 0,3 dus à un pic de dématerialisation à 0,5 MeV.

Il est raisonnable d'admettre le même taux de comptage dans notre installation ; comparée au mouvement propre total que nous observons, la contribution moyenne des cosmiques est de l'ordre de 10 pour cent et ne justifie pas en valeur absolue une protection particulière de ce type d'installation contre ce rayonnement.

3/ Composantes du mouvement propre d'origine incertaine.

La radioactivité des parois de la protection contribue au mouvement propre et l'effet de blindage réalisé par l'introduction de grands volumes même inactifs ne peut pas être négligé ; les soustractions de mouvement propre seront effectuées en en tenant compte (cf. paragraphe 7.3.2 et chapitre 9).

Un élément important dans la recherche de l'origine du bruit de fond résiduel est le spectre obtenu au-delà de la limite pratique de 1,6 MeV lequel montre effectivement plus ou moins les pics de l'activité naturelle : La figure 20 montre l'allure du spectre obtenu dans notre protection avec le détecteur sorti du collimateur dans la bande 1,23 à 4 MeV ; l'étalonnage en énergie est effectué à l'aide d'une source de ^{60}Co qui permet d'observer le pic à 2,5 MeV somme des pics à 1,17 et 1,33 et que l'on a une probabilité non négligeable de détecter.



Cette courbe se raccorde bien avec celle présentée figure 19 pour des énergies plus élevées (1) et on observe sur ce spectre des pics à 2,5 MeV - 2,9 MeV - 3,2 MeV et 3,6 MeV. Si le pic à 3,2 MeV peut sans doute être interprété comme le pic somme du Th C'' (énergies de 0,48 à 2,62 MeV émises en cascade), aucune explication *certaine* n'a été donnée pour les autres énergies également remarquées au laboratoire d'Argonne. Le pic à 2,5 MeV, de même qu'un pic à 0,5 MeV n'existe pas en permanence sur notre installation. Nous n'avons pas pu mettre en évidence de corrélation entre ces deux pics.

5.2 - ETUDE DES FLUCTUATIONS DU MOUVEMENT PROPRE

5.2.1 - Fluctuations dues au voisinage des piles atomiques.

Si l'atténuation moyenne réalisée par une protection en plomb de 5 cm s'avère suffisante, nous avons cependant constaté que, à Saclay, il subsistait des fluctuations prohibitives du mouvement pro-

---

(1) Les spectres figures 19 et 20 sont effectués avec le cristal à 3 photomultiplicateurs dont le bruit de fond dans la bande du ^{40}K est plus faible que celui du montage à un seul tube. Le raccordement avec la courbe (2) figure 23 n'est donc pas excellent. On constatera simplement que l'ordre de grandeur des taux de comptage par keV est le même.

pre résiduel. L'étude que nous en avons faite a montré qu'elles étaient liées au fonctionnement des piles atomiques voisines : L'argon 41, produit par activation de l'argon de l'air dans les circuits de refroidissement de pile (distante de 550 mètres de notre laboratoire) contribue lorsque le vent dirige le panache des cheminées des réacteurs vers nos installations à une augmentation du mouvement propre tant par le rayonnement du panache vu à travers la protection de plomb que par l'activité du volume d'air emprisonné dans l'enceinte de mesure. Dans le cas de notre appareillage nous avons trouvé une contribution de 30 % due à l'air emprisonné par rapport à l'augmentation globale.

D'autre part nous avons estimé que l'activité en ^{41}A de l'air extérieur au laboratoire pouvait varier entre 0 et 3.10^{-8} Ci/m^3. L'activité en ^{41}A à la sortie de la cheminée de la pile EL3 est de l'ordre de 4.10^{-3} Ci/s, le débit de l'air étant de 6,25 m^3/s [35]. Si on ne tient pas compte de la pile EL2 on en déduit que la dilution du panache est au minimum à cette distance de 5000 (1).

5.2.2 - Activité naturelle.

L'influence due à l'activité du radon et du thoron de l'air ambiant est très faible. L'activité d'un m^3 d'air varie dans la région parisienne entre 10^{-11} et quelques 10^{-9} Ci/m^3 [36]. Or, il y a en moyenne 2,19 γ par désintégration d'un atome de radon et 2,91 par atome de thoron [37] (il y a, toujours dans la région parisienne, environ 5 fois plus de radon que de thoron). Dans le cas de la plus forte activité naturelle, il existe au moins un rapport 5 entre les activités dues au ^{41}A et celles dues à l'activité naturelle, tout au moins en ce qui concerne l'air extérieur au batiment. En ce qui concerne l'air intérieur à la protection, il fau tenir compte de la teneur en radon de l'atmosphère de la pièce que nous contrôlons à l'EAR 600. Celui-ci montre qu'elle varie en général entre 5.10^{-11} et 3.10^{-10} Ci/m^3, soit de 4,25 à 25,5 cps/m^3. Si on se rappelle que 1 000 cps/m^3 donnent 50 p. 100 d'augmentation du bruit de fond, le détecteur arasant le collimateur on voit que la contribution aux fluctuations du Rn de la pièce reste très faible.

5.3 - CONCLUSION : LES POSSIBILITE D'UTILISATION D'UNE PROTECTION MINCE.

Dans un centre tel que Saclay, on ne peut s'affranchir des fluctuations du mouvement propre uniquement en augmentant l'épaisseur du blindage à moins que le volume intérieur de la protection reste faible -(quelques dm^3 par exemple). Cependant, si l'appareil réalisé apparaît convenable pour faire face à une radioactivité naturelle ambiante normale, l'épaisseur de la protection en plomb est insuffisante avec un air pollué en argon-41.

On peut envisager plusieurs solutions pour remédier à cet inconvénient :

- L'appareil tel qu'il est permet de faire des mesures à 3 p. 100 près pendant 50 p. 100 du temps à condition de se limiter à des comptages de 5 000 secondes.

- On peut installer le laboratoire de spectrographie dans une salle étanche de volume réduit dont la ventilation sera assurée par de l'air ayant été stoké plusieurs heures (la période de ^{41}A étant de 110 minutes) (2). Le stokage d'air peut être réalisé sans difficulté dans un couple de réservoirs sous pression, l'un étant en service et l'autre en cours de remplissage (ou par régénération de l'air circulant en circuit fermé). Une telle installation permet en outre une bonne climatisation de la salle de mesure et surtout permet d'espérer une filtration efficace de l'air qui y est introduit de façon à réduire l'activité naturelle (Le Radon naturel a une période de 3,8 jours ; il ne faut donc pas compter sur sa décroissance. Mais il n'émet pratiquement pas de γ (moins de 1 p. 1000 des désintégrations donnent un γ de 510 keV) ; ce sont ses produits de filiation qui ont une activité importante. Ceux-ci se fixent sur les poussières de l'air et il est raisonnable d'espérer en arrêter un grand nombre par filtration.

Si on emploi cette solution, le blindage doit être renforcé pour que les appareils ne soient pas sensibles aux variations de l'activité de l'air surmontant le bâtiment. Ceci peut être obtenu simplement en augmentant l'épaisseur des murs et du toit du laboratoire, par exemple en le plaçant dans

---

(1) Ces mesures ont été effectuées les réacteurs EL2 et EL3 étant au voisinage de leur puissance maximale.

(2) Cette solution a finalement été adoptée au laboratoire d'Argonne malgré la qualité de leur protection. En effet, le volume intérieur de leur pièce blindée est nettement supérieur à celui de notre appareil et ils ont été gênés par le ^{13}N produit par un cylotron voisin (β de 1,2 MeV donnant du bremstrallung et un effet de paires à cause de la monture de leur cristal moins absorbante que la notre). Bien que la période du ^{13}N soit de l'ordre de 10 mn, ils ont effectué un stockage d'air sur plusieurs heures pour diminuer les fluctuations de l'activité naturelle.

la cave d'un bâtiment ou en utilisant des parois en béton épaisses (de l'ordre de 30 cm), solution probablement moins onéreuse que la construction d'épais blindages métalliques.

Cette solution a été étudiée pour les appareils (version n° 4) mis en service au site de Marcoule et au service médical du CEN Saclay qui se distinguent également par le renforcement à 10 cm de la protection autour du cristal et par l'emploi d'un collimateur mobile.

- On peut enfin éloigner les installations des réacteurs. Malheureusement, cette solution idéale est en réalité assez peu pratique si l'appareil est destiné à des contrôles du personnel soumis au risque atomique. Cependant, le laboratoire sur remorque (appareil n° 3) que nous avons mis au point peut répondre à cet objectif. Il permet également des mesures systèmatiques de la population en telle région que l'on désire et peut servir au contrôle des travailleurs de centres atomiques ou de laboratoire d'application de radioéléments dont l'importance ne justifierait pas la construction de centres d'examen fixes.

VI

ÉTUDE DES PROPRIÉTÉS SPECTROGRAPHIQUES DU SYSTÈME SOURCE-DÉTECTEUR

Les performances atteintes par un détecteur de grand volume diffèrent sensiblement de celles obtenues de façon classique avec les cristaux de taille plus courante. Nous exposons dans ce chapitre, après un résumé des améliorations successives apportées à nos montages, comment varie la réponse de notre détecteur à un flux gamma monoénergétique suivant la géométrie du système source détecteur et l'énergie du rayonnement.

Les propriétés, établies pour une source ponctuelle, sont modifiées lorsqu'on utilise une source épaisse et nous en montrerons quelques exemples applicables directement aux mesures effectuées, tant sur le corps humain que sur des sources étendues dont on est maître du volume (liquides, poudres ou solides broyés).

6.1 - OBTENTION D'UN SYSTEME DETECTEUR AUX PERFORMANCES MAXIMALES

Nous avons traité au chapitre 5 le bruit de fond du détecteur et les améliorations qui y ont été apportées par les constructeur. L'efficacité des cristaux peut être considérée comme bonne eu égard aux calculs théoriques et nous n'avons pas remarqué de différences entre les différents cristaux que nous avons examinés tous parfaitement transparents et homogènes.

Nous avons en revanche amélioré considérablement le pouvoir de résolution en modifiant nos montages. (Au cours de cette étude, les résolutions sont toujours mesurées, pour être comparables entre elles, avec une source ponctuelle de ^{137}Cs placée contre la face inférieure du cristal, sur l'axe).

La résolution du systéme détecteur [38] varie de façon inversement proportionnelle à la racine carrée du nombre de photoélectrons parvenant sur la première dynode du photomultiplicateur. Nous pouvions augmenter ce nombre :

- en améliorant le rendement de collection des scintillations par la photocathode, r_s)
- en améliorant le rendement de conversion de la photocathode,
- en améliorant le rendement de collection de la première dynode.

Notre premier montage (1957) avait une résolution de 21 p. 100. Une sélection du tube utilisé portant sur l'obtention d'une meilleure sensibilité, d'une meilleure homogénéité de photocathode et une recherche de la valeur optimum de la haute tension à appliquer au tube et de la répartition des potentiels entre l'accélératrice et les dynodes a permis d'abaisser ce chiffre à 18 p. 100. Le montage est celui de la figure 12 (chapitre 4). Le photomultiplicateur type 54 AVP a un diamètre utile de photocathode de 110 mm, soit la plus grande dimension existante en qualité spectrographique et a photocathode plane.

Des essais d'amélioration du facteur de collection des scintillations en modifiant le couplage entre le tube et la fenêtre du cristal par l'emploi de conduits de lumière ont permis de vérifier que la couronne diffusante en téflon placée autour du tube était préférable.

Nous nous sommes ensuite rendu compte que le blindage magnétique en μ métal placé autour du tube jouait un rôle néfaste ; il s'arrêtait en effet au niveau de la photocathode et il semble qu'il se produisait un effet de bord perturbant les trajectoires des photoélectrons à ce niveau. Nous l'avons supprimé et orienté l'ensemble détecteur par rapport au champ magnétique régnant à l'intérieur de l'appareil. En même temps toutes les pièces en fer au voisinage de la photocathode ont été remplacées.

Nous avons obtenu ainsi des résolutions comprises entre 13,5 et 14,5 p. 100 (1). La plupart des spectres présentés ont été effectués dans ces conditions.

Les études effectuées à la Section d'Electronique Appliquée du C. E. A. [39] nous ont conduit en 1960 à placer l'accélératrice à un potentiel supérieur à celui de la première dynode (généralement voisin ou égal à celui de la 2ème dynode). La résolution est alors de 12 p. 100 et de 11,5 p. 100 avec les tubes du même type mais plus récents dont la sensibilité de photocathode est augmentée (elle peut atteindre 120 µA/lumen).

Dans le remplacement du montage à un tube par un montage à 3 tubes de 75 mm de diamètre (figure 14, chapitre 4) la surface sensible totale est approximativement la même. Le facteur r_s est cependant amélioré par suite de la meilleure répartition de cette surface et on atteint une résolution voisine de 9,5 p. 100. De plus, les blindages magnétiques de forme spéciale sont livrés avec les photomultiplicateurs, ce qui rend les mesures indépendantes de la position du détecteur.

Ajoutons que cette résolution apparaît maintenant difficile à améliorer et justifie l'emploi d'un sélecteur ayant plus de 25 canaux pour les mesures effectuées sur des sources minces. Nous verrons en effet que les résolutions obtenues avec des sources épaisses (comme le corps humain par exemple) restent de l'ordre de 18 %.

6.2 - CARTOGRAPHIE DU DETECTEUR

Nous groupons sous le nom de "cartographie" l'étude des propriétés du détecteur effectuée à différentes énergies à l'aide de sources ponctuelles placées à différentes positions par rapport au cristal. Nous nous sommes intéressés à l'efficacité intrinsèque, à l'amplitude des impulsions, au pouvoir résolution et au rapport du comptage dans le pic photoélectrique au comptage total.

6.2.1 - Cas d'une source sur l'axe du cristal.

1/ Efficacité intrinsèque.

C'est, par définition, la fraction du flux incident donnant dans le cristal au moins un effet décelable. Elle peut être calculée théoriquement en fonction des paramètres géométriques et de la section efficace d'absorption totale µ du NaI (T1) (publiée en fonction de l'énergie dans les tables de Wight) [4].

La figure 21 montre les courbes calculées d'après les tables publiées par Crouthamel [5] et d'après nos résultats expérimentaux.

L'examen de ces courbes nous permet les remarques suivantes :

- l'absorption du boîtier joue un rôle prépondérant en dessous de 100 KeV

- à distance source-cristal constante, l'efficacité diminue avec l'énergie (pour passer par un minimum très aplati autour de 5 MeV)

- pour une énergie donnée, l'efficacité passe par un minimum pour une distance source cristal de l'ordre du rayon du cristal.

On obtient cependant une approximation à mieux que 20 % de la valeur de l'efficacité en prenant celle immédiatement calculable pour une source à l'infini (épaisseur de NaI (T1) traversée égale à 10 cm).

2/ Résolution et rapport du comptage dans le pic photoélectrique au comptage total.

On peut, pour ces deux facteurs, faire les mêmes remarques qu'au paragraphe précédent. Cependant, l'influence de la géométrie est moindre et les valeurs expérimentales obtenues pour des sources placées contre le cristal constituent souvent des ordres de grandeur suffisants.

La figure 22 montre les courbes de variation avec l'énergie que nous avons obtenues. La courbe de résolution est donnée pour le cristal monté avec un seul photomultiplicateur. Nous plaçons également les points figuratifs des résolutions obtenues sur le ^{137}Cs et le ^{60}Co avec le détecteur à 3 photomultiplicateurs. On remarque que la courbe ne suit pas la loi de variation classique en $1/\sqrt{E}$. Ceci est dû à une diminution du facteur de collection des photons lumineux par le photocathode au fur et à mesure que l'énergie augmente. En effet, le "pic photoélectrique" résulte aux énergies élevées de la succession en un court instant d'effets Compton suivi d'un effet photoélectrique et la répartition moyenne des scintillations dans le NaI (T1) se modifie quand l'énergie augmente.

---

(1) R variait de même que l'amplitude des pics avec la position du détecteur par rapport au collimateur.

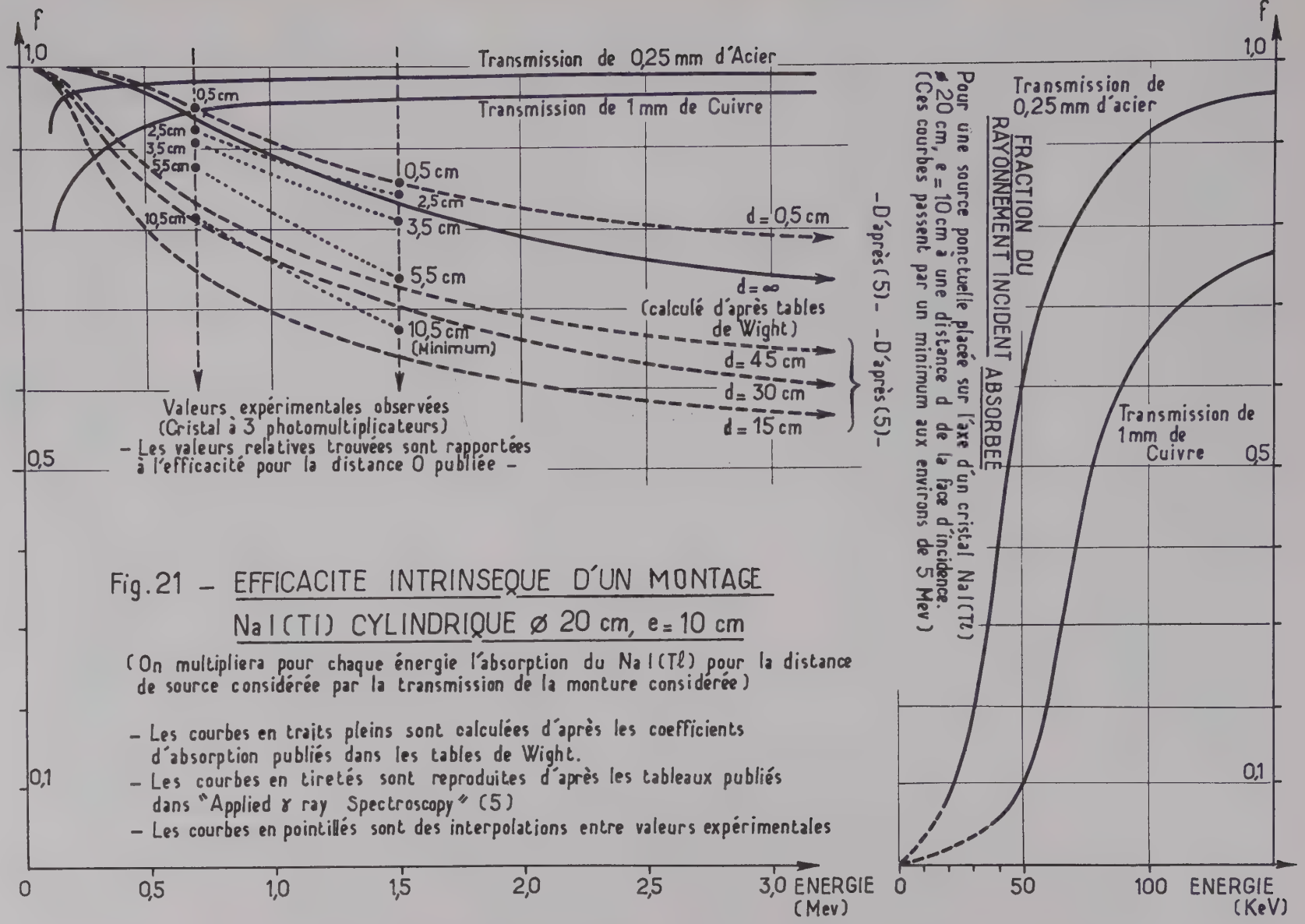


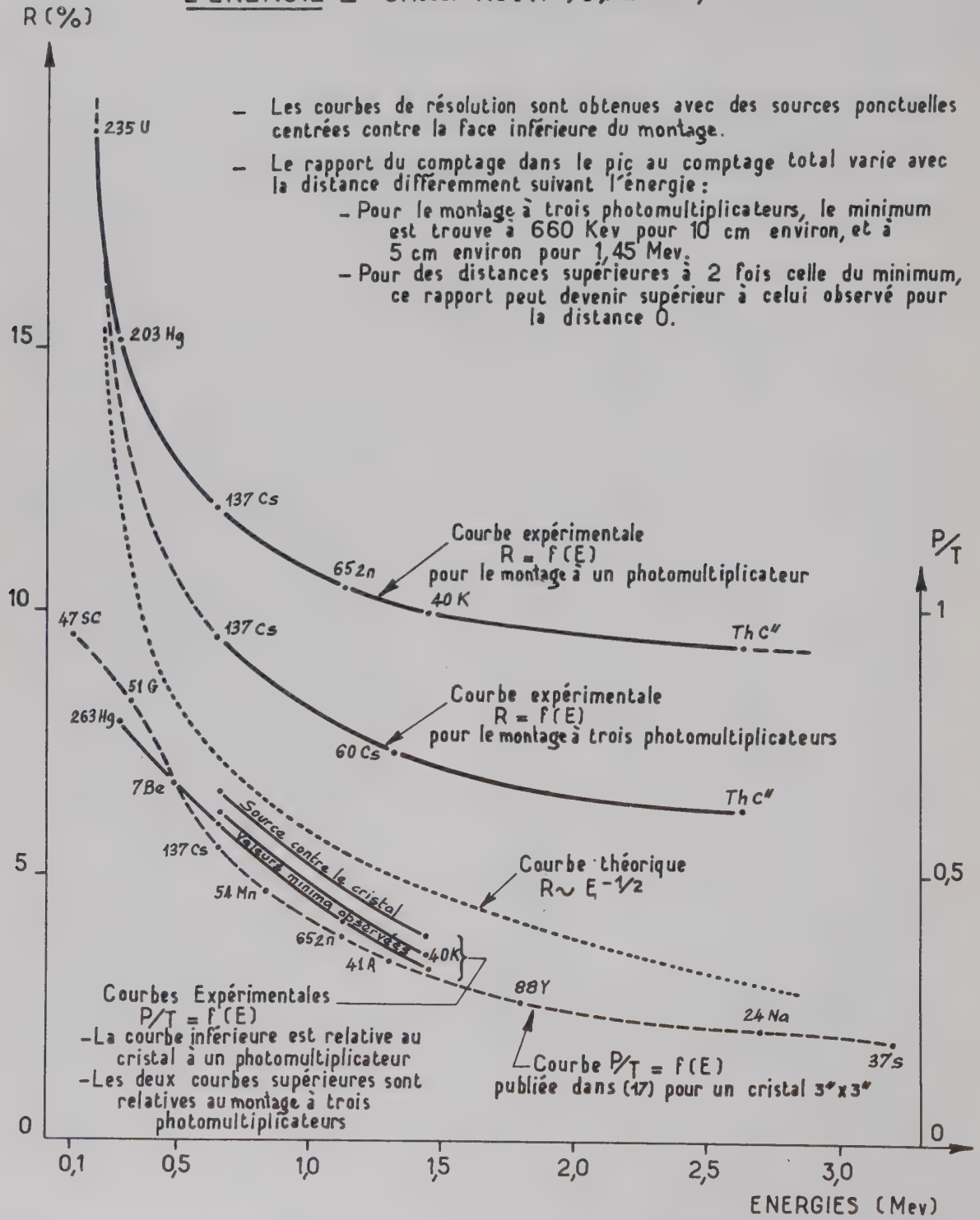
Fig. 21 – EFFICACITE INTRINSEQUE D'UN MONTAGE NaI(Tl) CYLINDRIQUE ø 20 cm, e = 10 cm

(On multipliera pour chaque énergie l'absorption du NaI(Tl) pour la distance de source considérée par la transmission de la monture considérée)

- Les courbes en traits pleins sont calculées d'après les coefficients d'absorption publiés dans les tables de Wight.
- Les courbes en tiretés sont reproduites d'après les tableaux publiés dans "Applied γ ray Spectroscopy" (5)
- Les courbes en pointillés sont des interpolations entre valeurs expérimentales

Fig. 22

RESOLUTION ET RAPPORT DU COMPTAGE DANS LE PIC AU COMPTAGE TOTAL EN FONCTION DE L'ENERGIE _ Cristal NaI(Tℓ) - ⌀ 20 cm, e = 10 cm



Ainsi le rapport des résolutions pour le ^{137}Cs et le ^{60}Co (pic à 1,33 MeV) est en théorie de 1,41.

Il est de 1,18 avec la sonde à un seul photomultiplicateur et de 1,29 avec celle à trois photomultiplicateurs. En effet, dans ce dernier cas, l'homogénéité de photocathode est bien supérieure (tubes de diamètre plus petit). La sensibilité de photocathode est plus élevée (tubes plus récents) et les surfaces sensibles sont mieux disposées pour recueillir les scintillations.

La courbe de variation avec l'énergie du rapport du comptage dans le pic au comptage total n'est significatif que si la source utilisée est monoénergétique. Nous figurons les points obtenus expérimentalement avec les éléments de ce type dont nous disposions et, en tiretés, la courbe plus complète extraite du catalogue de Heath [9]. Celle-ci, obtenue avec un cristal $\emptyset$ et h 7,5 cm diffère peu de la nôtre dans la région des énergies moyennes qui nous intéresse.

6.2.2 - Cas d'une source excentrée.

1/ Déplacement sous la face inférieure du cristal.

Le tableau ci-dessous montre quelques résultats obtenus avec une source ponctuelle de ^{137}Cs, résultats également confirmés en utilisant le rayonnement du ^{60}Co. L'étude effectuée avec le montage à un seul photomultiplicateur ayant 13,5 % de résolution pour 0,66 MeV a été ultérieurement précisée pour le montage à 3 photomultiplicateurs. On constate que, quelle que soit la distance du cristal au plan de déplacement de la source (inférieure à 10 cm), les chiffres obtenus sont comparables : les propriétés du détecteur varient peu tant que le rayonnement n'atteint pas le cristal en un point trop rapproché de la surface latérale. (Les propriétés sont invariantes à une précision meilleure que 2 σ tant que la source est à moins de 8 cm de l'axe).

2/ Source sur le côté du cristal.

Le phénomène prépondérant est la dérive vers les basses énergies de l'amplitude des pics photoélectriques. La dérive est d'autant plus importante que la source est placée plus prés du haut du cristal. Ce phénomène est dû à ce que la majorité des centres d'émission de lumière se trouve sur le côté du scintillateur donc relativement mal disposé pour être vus par la photocathode. Cet effet

Tableau comparatif de l'évolution de la résolution du rapport Pic/Total et de l'efficacité en fonction de la distance d de la source à l'axe du cristal

	d en centimètres										
	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
R = Résolution	12,3 (3cm)	12,2	11,8	11,8	12,0(3)	11,5	11,8	11,9(3)	11,9	11,8	11,8(3)
(p. 100)	12,7(0)				11,8(0)			12,4(0)			13,0(0)
P = Comptage dans le Pic Ph. (unités arbitraires)	14,6	15,0	14,6	14,4	14,0	13,4	12,8	12,0	10,7	9,4	8,1
Ω = Angle solide (stéradians)	4,48	4,47	4,42	4,38	4,28	4,13	4,00	3,94	3,32	2,76	2,45
$\frac{P}{T}$ = Rapport du comptage P au comptage total	0,47(3) 0,58(0)	0,48	0,48	0,50	0,45(3) 0,58(0)	0,45	0,47	0,47(3) 0,55(0)	0,43	0,42	0,40(3) 0,48(0)
P . $\frac{4\pi}{\Omega}$ (unités arbitraires)	4,1	4,2	4,2	4,1	4,2	4,1	4,0	4,0	4,2	4,3	4,2
T . $\frac{4\pi}{\Omega}$ (unités arbitraires)	8,8	8,8	8,8	8,4	9,4	9,0	8,6	8,5	9,6	10,2	9,6

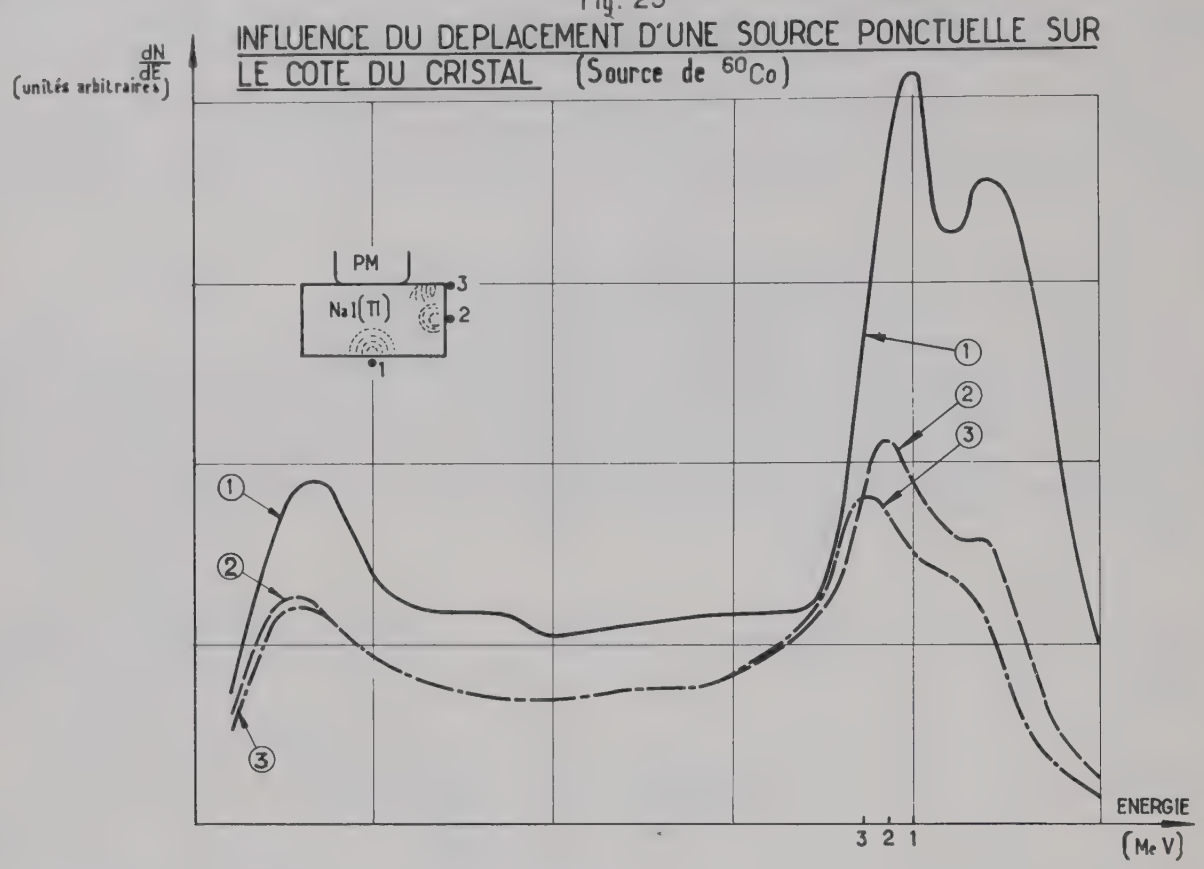
Résultats obtenus avec une source ponctuelle de ^{137}Cs déplacée radialement dans un plan parallèle à la face inférieure du cristal et situé à 3 cm (certains résultats spécifiés sont effectués pour la source contre le cristal).

NB. Le rapport Pic/Total indiqué n'a qu'une valeur comparative : dans l'absolu, il est trop faible (sauf pour la source contre le cristal) car la partie Compton des spectres est augmentée par une diffusion importante, les sources étant placées sur un plan infini en plexiglass.

Angles solides calculés d'après Tallqvist [40].

dépend évidemment de l'énergie du rayonnement (voir schéma fig. 38). La dérive a pour conséquence dans l'examen des sources étendues par un détecteur non collimaté un élargissement des pics photoélectriques (première cause de perte de résolution).

Fig. 23



La figure 23 illustre ce phénomène à l'aide de spectres de ^{60}Co. On remarque également la diminution du rapport du comptage dans le pic au comptage total et de la résolution (deuxième cause de la perte de résolution dans l'examen des sources étendues avec le détecteur non collimaté).

Le tableau ci-dessous (mesures obtenues avec une source ponctuelle placée contre la face latérale du scintillateur, à h cm de sa face inférieure) résume les propriétés observées.

E = 662 keV						
h (cm)	0 (face inférieure)	0 (coté)	2,5	5	7,5	10
Dérive (p. 100)	0	-0,8	-2,4	-7,2	-8	-10
P/T	0,6 à 0,5	0,45	0,49	0,53	0,55	
R (p. 100)	12	12,3	12,5	14,7	23,2	
E = 1,17 MeV						
h (cm)	0 (face inférieure)			5		10
Dérive (p. 100)	0			-3,5		-6,5

Ce tableau est relatif au montage à un seul photomultiplicateur. Dans le montage à 3 tubes, les dérives sont du même ordre pour une source placée entre les tubes et environ moitié pour une source placée au plus près d'un des tubes.

6.3 - ETUDE AVEC UNE SOURCE ETENDUE

Il résulte des tests précédents que, du point de vue spectrographique, on a intérêt à n'utiliser le cristal que par sa face inférieure. Le rôle du collimateur qui contribue de plus à augmenter le blindage est ainsi mis en valeur. Cependant, du point de vue de la sensibilité, on a avantage à répartir au mieux la source tout aturour du cristal ; de même, on ne peut pas rentrer le cristal dans le collimateur avec les sources très étendues (cas du corps humain par exemple).

Chaque source constitue donc un cas particulier mais nous pouvons prévoir dans certains cas la meilleure géométrie utilisable et l'ordre de grandeur des rendements dans le pic photoélectrique pour l'examen soit du corps humain soit de poudres (de densité voisine de 2 par exemple).

6.3.1 - Recherche de la géométrie optimum avec une poudre.

Les essais ont été conduits avec un mélange homogène de sable de Fontainebleau (inactif) avec une source de césium liquide étalonnée.

La concentration était de 0,1 μ Ci pour 10 kg. Nous avons augmenté progressivement le diamètre de la source jusqu'à une valeur où on ne gagne pratiquement plus sur le taux de comptage. Pour chaque diamètre de source, nous avons étudié plusieurs épaisseurs (l'épaisseur maximum dépendant de l'autoabsorption du rayonnement par la source). Le cristal était sorti du collimateur sauf pour la dernière position. Pour chaque essai nous avons indiqué figure 24 la géométrie utilisée et :

Le poids de l'échantillon en g

Le comptage dans le pic en cps/kg

Le rapport pic sur total en p. 100

Le comptage total en cps/Kg

L'activité vue en cps

Le coefficient expérimental d'atténuation A que l'on peut en déduire

Nous indiquons enfin les classement par ordre de mérite des différentes positions : le chiffre de gauche donne un ordre basé sur les mérites proprement spectrographiques et résulte de la moyenne des classements obtenus en considérant le comptage dans le pic, le rapport pic sur total et la résolution. Le chiffre de droite donne un ordre basé sur la recherche de la meilleure sensibilité totale. La forme optimum sera le plus souvent celle qui réalise un compromis entre ces deux classements ; les essais 9 et 11 sont à ce point de vue les meilleurs.

6.3.2 - Déformation des spectres par diffusion et absorption dans la source.

1/ Etudes effectuées.

La répartition en fonction de l'énergie de l'intensité du rayonnement d'une source reçu par le détecteur est modifiée par la présence de matière sur le trajet des photons. C'est justement le cas des contaminations internes et les spectres seront d'autant plus modifiés que le contaminant sera moins énergique et localisé plus profondément dans le corps.

Le processus qui perturbe l'allure des spectres est essentiellement dans le domaine d'énergie qui nous intéresse : le diffusion Compton inélastique (1) et dépend notamment de la densité de la matière traversée et du numéro atomique Z des éléments qui la composent. Le corps humain étant surtout composé d'éléments relativement légers et de Z faible, n'empêche pas l'étude spectrographique mais en modifiera seulement les conditions.

Nous envisagerons deux cas limites :

- Source localisée en un point (ou une zone) déterminé de l'absorbant.
- Source uniformément répartie étudiée pratiquement par étalonnages aux chapitre 7 et 9

Nous décrivons dans ce paragraphe l'étude expérimentale du premier cas effectué à l'aide de plexiglas. Ce matériau a été choisi car il représente assez bien le corps humain : Sa densité est de 1,6 et sa composition $(C_5O_2H_8)^n$ ne s'éloigne pas trop de celle du tissu musculaire.

---

(1) Il convient également de tenir compte du rayonnement de freinage produit dans la matière par les émetteurs β

ESSAI N°ET ORDRES DE MERITE	FORME	Ø (cm)	h (cm)	p (g)	OBSERVATIONS	Pic (cps/s.kg)	Pic/Tot. (%)	Comptage Total (cps/kg)	Atten. expérimental	Rés. (%)	Comptage reçu (Cps)
1 (7-10)		7,5	1,4	90	Container Alu (Augmente la diffusion et diminue P/T et augmente B)	97	21	462	1,53	12,5	41,5
2 (1-11)		5,7	1,3	60	Container Verre	74,3	58	128	0,42	12,5	7,7
3 (10-3)		21,5	9,7	5680	Container Inox	18,2	31	59	0,19	13,4	336
4 (2-9)		24	1	970	"	42	38	109	0,36	12,3	105
5 (4-7)		15,2	6,7	1855	Container Alu. (l'inconvénient en est de peu d'importance ici ou la source est épaisse).	30,5	36	84,5	0,27	12,2	157
6 (6-8)		24 e ∿ 1	1	1460	Container Inox	34,6	37	93	0,30	14,2	136
7 (8-4)		32	4,6	6045	"	18,8	34	45,2	0,15	13,4	333
8 (11-1)		32 e ∿ 5	4,6	10.000	"	17,7	31	57	0,18	14,3	570
9 (3-6)		27,5	3,5	3.150	"	31,6	38	83,2	0,27	12,3	278
10 (9-2)		id. h. totale	13	6055	"	26	34	75,5	0,25	15	457
11 (5-4)		collimateur 24,5	7	6400	Container carton	18,8	36	52,2	0,17	11,5	333

Fig. 24 : RECHERCHE DE LA MEILLEURE GEOMETRIE SOURCE-CRISTAL

Source : mélange homogène à 0,1 µc de ^{137}Cs pour 10 kg de sable inactif broyé

Fig.25: ABSORPTION ET DIFFUSION PAR DU PLEXIGLAS

Source ponctuelle sur l'axe à 30cm du fond d'un cristal NaI(Tl) Ø 20cm. h 10cm (monture en cuivre) à l'intérieur d'une protection en plomb de section 65x65cm.
La distance source-cristal comme l'épaisseur de plexiglas sont maintenues constantes.
La disposition de l'ensemble est modifiée de façon à ce que la source soit plus ou moins enfoncée à l'intérieur du bloc de plexiglas dont les dimensions sont 40x40cm. de section et 28cm. d'épaisseur.
Spectres obtenus au sélecteur à 200 canaux.
Source d'uranium enrichie à 20% en 235U - dE = 4KeV

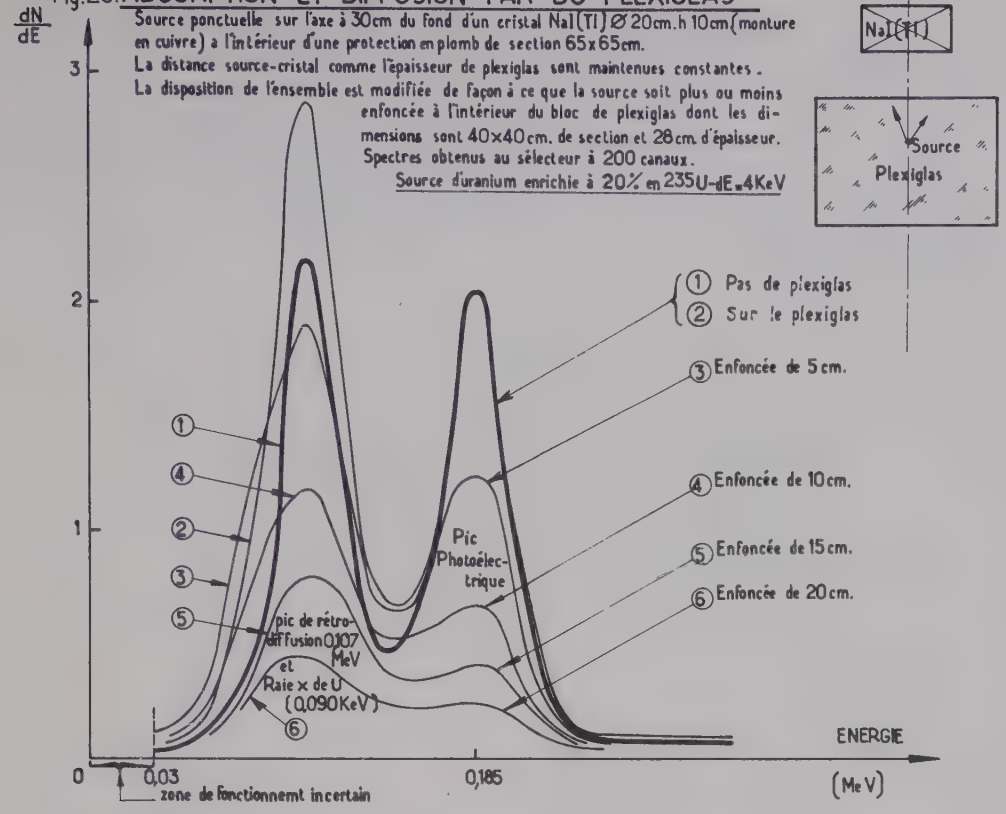
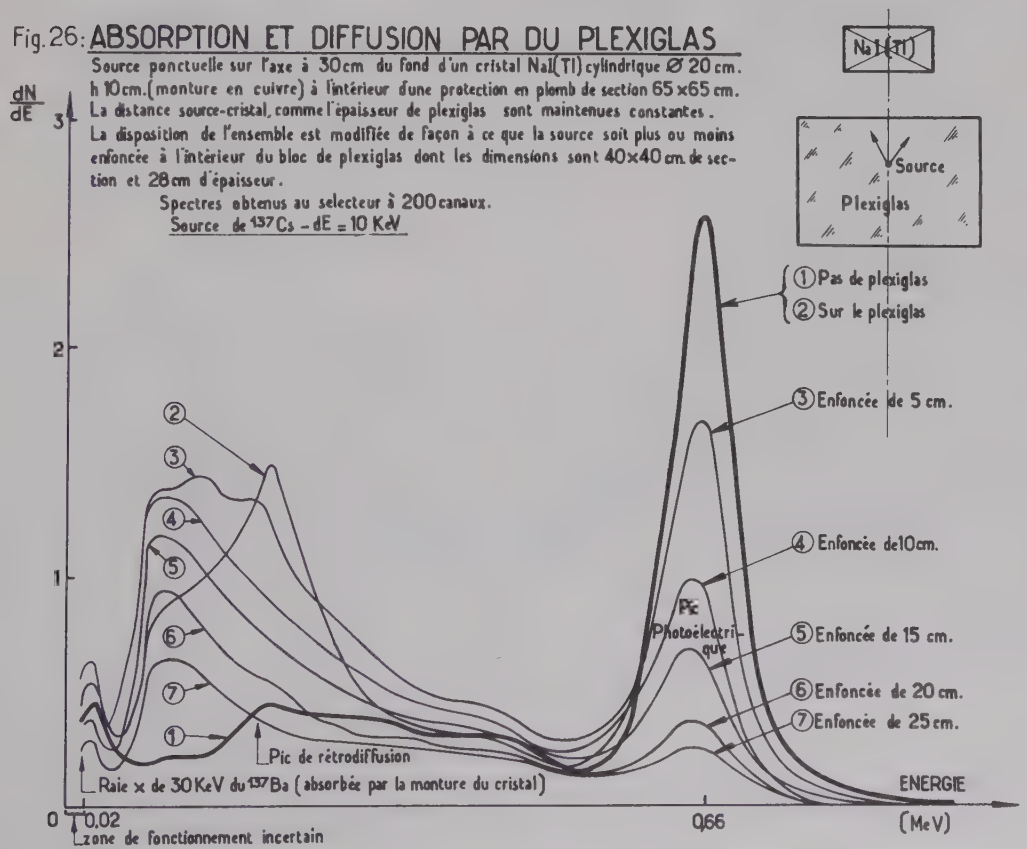


Fig.26: ABSORPTION ET DIFFUSION PAR DU PLEXIGLAS

Source ponctuelle sur l'axe à 30cm du fond d'un cristal NaI(Tl) cylindrique Ø 20 cm. h 10cm. (monture en cuivre) à l'intérieur d'une protection en plomb de section 65 x 65 cm.
La distance source-cristal, comme l'épaisseur de plexiglas sont maintenues constantes.
La disposition de l'ensemble est modifiée de façon à ce que la source soit plus ou moins enfoncée à l'intérieur du bloc de plexiglas dont les dimensions sont 40x40 cm. de section et 28cm d'épaisseur.
Spectres obtenus au selecteur à 200 canaux.
Source de ^{137}Cs - dE = 10 KeV

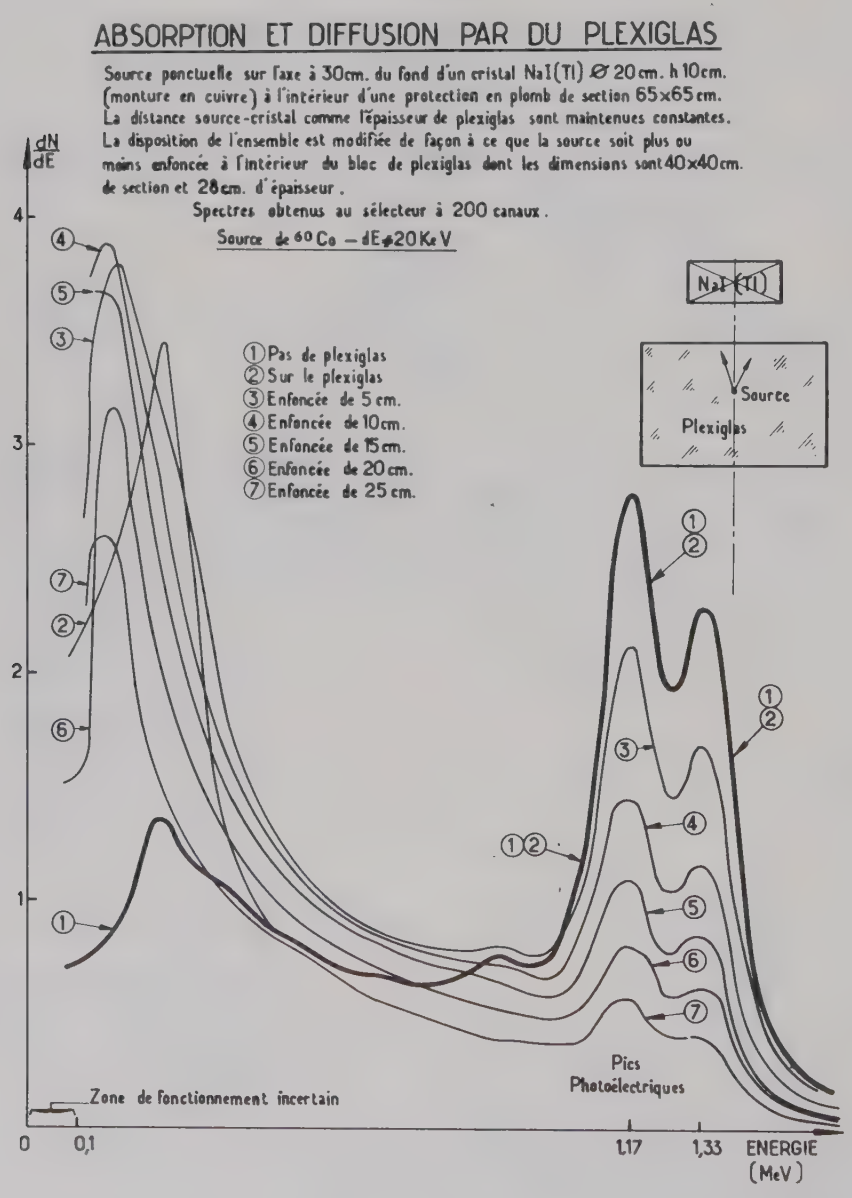


2/ Montage expérimental.

Le plexiglas utilisé comme absorbant et diffusant a été assemblé en un bloc de 28 cm d'épaisseur, de surface carrée de 40 cm de côté. La source (ponctuelle devant les dimensions du montage) pouvait être déplacée à l'intérieur de ce bloc le long de son axe vertical de symétrie confondu avec l'axe du détecteur.

L'épaisseur du bloc a été choisie de façon à représenter approximativement celle d'un corps humain. Enfin, pour que les spectres obtenus soient comparables entre eux, la distance source-détecteur a été maintenue égale à 30 cm ; le plexiglas était plus ou moins rapproché du détecteur pour obtenir les profondeurs désirées du radioélément dans le matériau. Le schéma du montage est indiqué sur les figures 25 à 28.

Fig.27



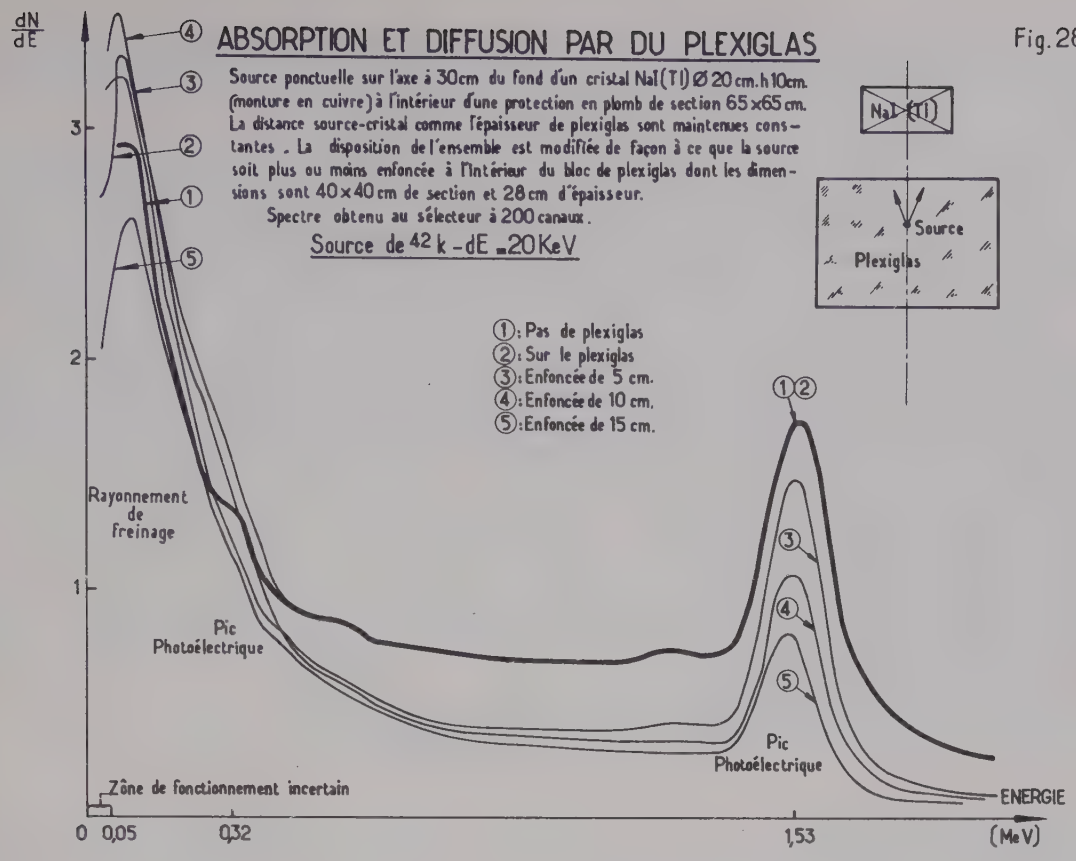


Fig. 28

Nous avons étudié les rayonnements de :

90 + 185 keV	(uranium enrichi à 20 p. 100)	figure 25
662 keV	(^{137}Cs)	figure 26
1,17 + 1,33 MeV	(^{60}Co)	figure 27
1,52 MeV	(^{42}K)	figure 28

Nous couvrons ainsi une gamme d'énergie s'étendant depuis une centaine de keV jusqu'à 1,5 MeV correspondant à la plupart des cas pratiques. Le potassium 42 a été choisi comme source à 1,5 MeV car son rayonnement γ est très voisin de celui du potassium 40 que nous ne pouvions pas avoir avec une activité suffisante en source ponctuelle.

3/ Résultats obtenus.

Pour chaque corps nous présentons (figure 40 à 43) les spectres obtenus en l'absence de plexiglas et pour les profondeurs 0,5, 10, 20 et 25 cm, la profondeur 0 correspondant au cas de la source posée sur le bloc (contamination externe si on fait le rapprochement avec le corps humain). On remarque que même dans ce cas le spectre est affecté par la présence du matériau sous-jacent, sauf toutefois dans la région du pic photoélectrique.

Nous déduisons des spectres présentés le tableau ci-après qui donne la transmission apparente totale rapportée au cas de la source isolée et le rapport du comptage dans le pic photoélectrique au comptage total. On remarquera sur ce tableau les variations rapides avec l'énergie.

4/ Interprétation des résultats.

- Absorption par effet photoélectrique

Une partie du rayonnement émis dans la direction du scintillateur subit dans le matériau entourant la source une absotption totale par effet photoélectrique. Il en résulte une diminution de l'acti-

Tableau caractérisant l'absorption et la diffusion par du plexiglas

Energie (MeV)	Transmission apparente (en p. 100)							Pourcentage de comptage dans le pic ph.						
	1	2	3	4	5	6	7	1	2	3	4	5	6	7
0,185	100	133	102	65,5	43,2	26,3	-	0,50	0,40	0,32	0,38	0,26	0,14	-
0,665	100	148	148	117	93,5	70	53,5	0,56	0,41	0,27	0,21	0,17	0,11	0,09
1,17 + 1,33	100	130	136	117	100	83,5	64,4	0,50	0,41	0,30	0,23	0,19	0,18	0,11
1,53	100	117	80	81	64,5	-	-	0,10	0,08	0,11	0,09	0,09	-	-
								(1)	(1)	(1)	(1)	(1)		

Source ponctuelle à 30 cm du détecteur [NaI (T1) Ø 20 cm, h 10 cm monture cuivre] bloc de plexiglas de surface équivalente au plan infini et d'épaisseur 28 cm.

cas 1 : source isolée
cas 2 : source posée sur le plexiglas
cas 3 : source enfoncée de 5 cm
cas 4 : source enfoncée de 10 cm
cas 5 : source enfoncée de 15 cm
cas 6 : source enfoncée de 20 cm
cas 7 : source enfoncée de 25 cm

(Les transmissions apparentes sont rapportées au cas de la source isolée).

(1) Le rapport pic sur total est ici affecté par un important rayonnement de freinage.

vité apparente sans modification de la forme du spectre. Elle reste négligeable entre 0,1 et 1,5 MeV dans le cas du plexiglas (ou de l'eau), mais elle devient vite très importante en-dessous de 0,5 MeV avec de la silice (paragraphe 7. 3. 2).

- Diffusion Compton.

Le rayonnement émis peut subir, quelle que soit sa direction initiale, des diffusions Compton multiples dans la matière qu'il traverse avec dégradation de l'énergie à chaque choc. Il en résulte deux effets qui se compensent plus ou moins suivant la profondeur de la source et l'énergie du rayonnement qu'elle émet. (La section efficace Compton diminue lentement quand l'énergie augmente) :

- Photons dont la trajectoire initiale n'atteignait pas le détecteur.

Une partie de ceux-ci atteint finalement le cristal et y produit un accroissement du comptage dans la partie Compton du spectre. Il y a donc augmentation du comptage total et, le pic photoélectrique étant inchangé, diminution du rapport pic sur total.

- Photons dont la trajectoire initiale atteignait le détecteur.

Il y a alors l'équivalent d'une absorption, les photons d'énergie dégradée étant finalement absorbés par effet photoélectrique.

Dans les matériaux légers c'est pratiquement le seul phénomène intervenant dans le coefficient d'absorption totale et qui, sur les spectres, affecte le comptage dans le pic photoélectrique (voir la différence entre les courbes 2 et 3 et suivantes, figures 25 à 28).

- Rayonnement de freinage.

En l'absence de matière entourant la source, seuls les β atteignant le détecteur y produisent un rayonnement de freinage dans le boitier ou les premières couches du NaI (T1). Cet effet est considérablement accru par la présence autour de la source d'une épaisseur de matière supérieure au parcours des β puisqu'ils participeront tous au phénomène. Le rayonnement émis subit les modifications décrites au paragraphe précédent. Il en résulte un accroissement du comptage dans les basses énergies qui peut être très important si les β sont énergiques.

On remarque à ce propos la différence entre les courbes 3 et suivantes pour le ^{137}Cs (figure 41) β^- E max 0,52 MeV et pour le ^{42}K (figure 43) β^- E max 3,56 MeV.

- Comptage direct des β^-

Le parcours maximum des β^- est pour un spectre continu au-dessus de 0,6 MeV : [4]

$$1\ [g/cm^2] = 0,526\ E_{Max(MeV)} - 0,094$$

Cela correspond pour le ^{42}K à : 14,2 mètres dans l'air, 1,53 cm dans le plexiglas et 2 mm dans le cuivre.

Il en résulte que pour les courbes 1 et 2, figure 28, on peut observer un comptage non négligeable au-delà du pic photoélectrique du aux β atteignant le NaI (T1). 5 cm de plexiglas (courbe 3) suffisent à annuler cet effet.

5/ Conclusion.

Les expériences effectuées à l'aide du plexiglas confirment que la spectrographie γ du corps humain est possible et permet l'examen des contaminations internes. La profondeur maximum possible d'une telle contamination est de l'ordre de 15 cm si on admet de pouvoir retourner le sujet (allongé) et l'examen des spectres obtenus montre que les pics photoélectriques sont toujours visibles pour cette épaisseur d'absorbant.

Au contraire, l'examen de sources plus denses, où l'autoabsorption joue un rôle très important, limite très vite l'épaisseur de source utilisable.

Dans tous les cas, l'interprétation des spectres nécessitera des hypothèses sur la situation de la source dans la matière étudiée (homogène, localisée et si oui à quelle profondeur). Ces hypothèses étant faites, il faudra se référer à des spectres étalons tracés avec la même géométrie.

VII

MESURES SUR LE CORPS HUMAIN : RENDEMENT DE DÉTECTION ET PRÉCISION

INTRODUCTION

La spectrographie γ du corps humain présente un aspect à la fois qualitatif et quantitatif . Ces deux aspects nécessitent la connaissance du rendement de détection pour la position d'examen choisie et celle de la précision obtenue dans la détermination des énergies et des taux de comptage.

Nous discutons d'abord dans ce chapitre le choix de la géométrie et présentons les expériences faites pour la déterminer. Nous étudions ensuite les rendements de détection obtenus avec cette géométrie et indiquons les méthodes d'étalonnage que l'on peut utiliser. Enfin, une discussion sur la précision nous permet de choisir le temps d'examen et d'effectuer une comparaison entre les performances de notre détecteur et celles d'un cristal de diamètre moitié.

Nous présenterons au chapitre suivant quelques exemples de spectres obtenus dans ces conditions et les conclusions qui peuvent en être déduites.

7.1 - ETUDE DE LA POSITION DU SUJET EXAMINE

7.1.1 - La morphologie du sujet et le rendement de détection.

La radioactivité d'un être vivant est normalement fonction de son poids ou de celui des organes où sont concentrés les radioéléments considérés. Si les examens sont toujours effectués avec une même géométrie, le rapport entre les activités par kilogramme apparentes et réelles dépend donc de la répartition des tissus où sont concentrés les émetteurs, c'est-à-dire en définitive de la morphologie du sujet.

On peut chercher à mettre en valeur cette influence : par exemple, l'activité apparente par kg due au potassium (principalement concentré dans les tissus musculaires) dépend des masses graisseuses (pauvres en potassium) que comporte le sujet. Si on tient compte de la dispersion naturelle de la teneur en potassium du tissu musculaire, il y a là un moyen d'obtenir un ordre de grandeur du pourcentage pondéral de graisse. Cette méthode a été appliquée, notamment dans le cas du porc [41].

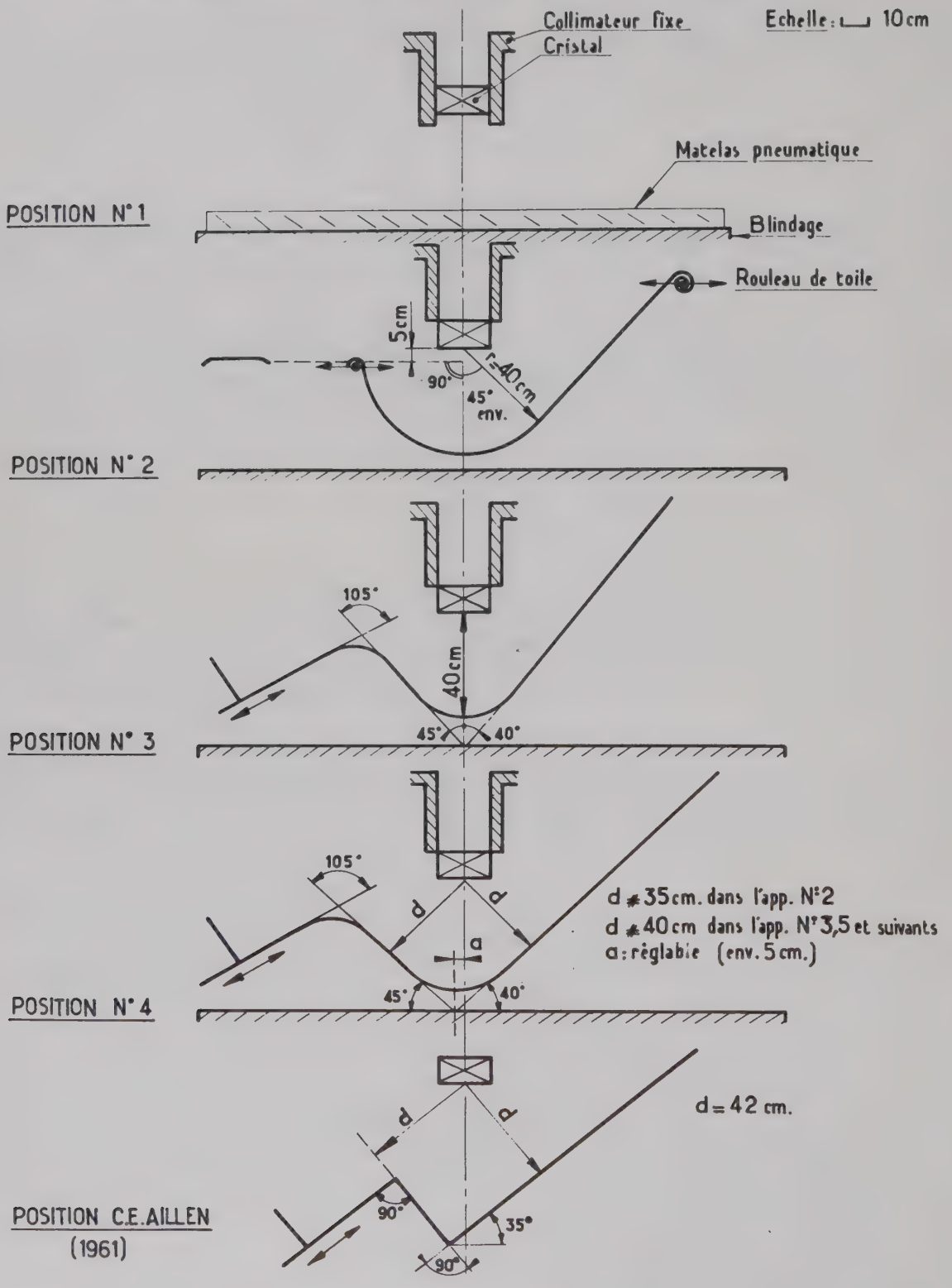
En général, on cherche au contraire à rendre l'activité apparente aussi indépendante que possible de la morphologie. Cela permet en particulier de simplifier les étalonnages qui peuvent alors souvent être effectués à l'aide d'un mannequin standard. Pour parvenir à ce résultat, il faut obtenir une adaptation automatique de la géométrie à la morphologie. Par exemple, le siège d'examen étant fixe par rapport au détecteur, un individu de grande taille sera plus rapproché du cristal qu'un individu maigre ; supposons que les deux individus aient la même teneur en potassium : on peut espérer, si la position d'examen est bien choisie, que l'amélioration du rendement géométrique chez le premier individu sera compensée par une absorption moyenne plus grande.

Le Département de la Protection Sanitaire du C.E.A. utilise pour l'examen des petits animaux (ex : rats) un dispositif à détecteur fixe où l'animal tourne autour d'un axe. Un effet de moyenne est ainsi obtenu et la reproductibilité des mesures améliorée. Le même principe est applicable à la spectrographie γ du corps humain : Nuclear Enterprise (Grande Bretagne) a construit un ensemble où 4 détecteurs sont disposés à 90° sur une couronne qui peut tourner et coulisser sur son axe ; les détecteurs décrivent des hélices autour du sujet examiné. Cette disposition présente l'inconvénient d'une perte de sensibilité pour un détecteur (ou un ensemble de détecteurs) donné.

La recherche de la position optimum avec un détecteur unique revient à étudier la forme du siège et son emplacement dans l'appareil. L'étude du siège sera faite en tenant compte d'autre part

Fig. 29

SCHEMA DES DIFFERENTES POSITIONS D'EXAMEN



de ce que la position choisie doit être suffisamment confortable pour que le patient puisse y rester sans gêne et surtout sans bouger pendant la durée de l'examen (un quart d'heure par exemple).

Quant à la réalisation, elle sera effectuée en prenant les précautions habituelles dans le choix des matériaux (bruit de fond) et en effectuant une construction aussi légère que possible (diffusions).

On trouvera figure 29 un schéma des positions réalisées et, à titre de comparaison, de la nouvelle position décrite par C. C. Miller en 1961 [42].

7. 1. 2 - Les résultats obtenus.

La figure 30 groupe les résultats de 92 mesures effectuées sur les appareils 2 et 4 (1). Chaque point représente le résultat obtenu sur un sujet. En ordonnée du graphique sont figurées les activités nettes lues contaminations éventuelles déduites. En abscisse est porté un coefficient d'obésité relative que nous avons défini de la façon suivante :

Soient P (kg) le poids du sujet
1 (cm) sa taille

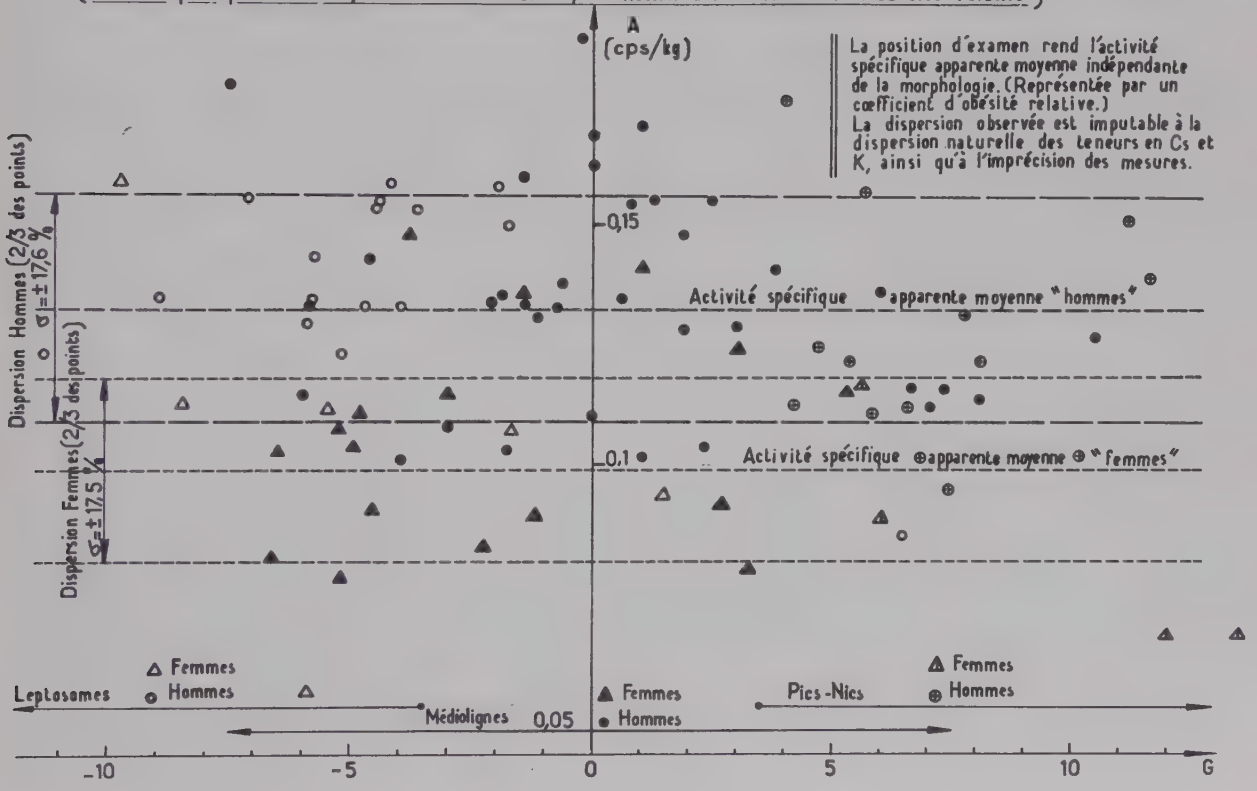
On pose :

$$G = 100 \quad \frac{P - (1 - 100)}{1} = 100 \; \frac{P + 100 - 1}{1}$$

Fig. 30

SPECTROGRAPHIE GAMMA DU CORPS HUMAIN : ETUDE DE LA POSITION D'EXAMEN

(Activité spécifique nette lue, contaminations déduites, en fonction d'un coefficient d'obésité relative)



---

(1) L'appareil n° 4 est utilisé pour le contrôle systématique du personnel au Service Médical du Centre Industriel de Marcoule. Beaucoup des résultats de mesure présentés dans ce chapitre ont été aimablement mis à notre disposition par ce Service.

Le facteur (P + 100 - 1) traduit l'obésité d'un individu supposé adulte (nous n'avons pas jugé utile de faire une distinction entre hommes et femmes) et il est rapporté en poids du sujet ; il peut évidemment être positif ou négatif.

Les sujets examinés sont représentés par des signes différents suivant le sexe et le type du point de vue morphologique (identifié d'après l'aspect général du sujet). Nous distinguons les pics-nics (de tendance générale obèse), les leptosomes (maigres, secs) et les médiolignes (type intermédiaire). Une telle classification dont les limites sont arbitraires, pourrait d'ailleurs être complétée suivant l'origine d'une obésité (graisseuse, aqueuse, etc...) suivant également que la personne examinée à un tempérament sanguin ou non, etc ...

On constate sur le graphique que les médiolignes s'étendent approximativement de G = -10 à G = +10

pour les leptosomes $G < -4$

pour les pics-nics $G > +4$

Les résultats présentés ont été choisis au hasard dans chaque classe de sujets de façon à obtenir un nombre de points figuratifs suffisant. Notons simplement que les médiolignes sont statistiquement de beaucoup les plus nombreux parmi les résultats dont nous pouvions disposer.

Les activités nettes lues portées en ordonnée sont obtenues à partir des surfaces des pics photoélectriques du ^{137}Cs et du ^{40}K exprimées en cps/kg en tenant compte du rapport du comptage total au comptage dans le pic mesuré par étalonnage pour ces deux énergies. Il est ensuite effectué une correction forfaitaire de + 10 p. 100 pour tenir compte de la contribution normale due aux radium thorium et descendants, difficile à mesurer de façon précise. L'ordonnée du graphique est donc proportionnelle à l'activité spécifique des sujets examinés qu'elle représente aux rendements près (une deuxième correction est faite en outre pour tenir compte des rendements différents dans les deux appareils).

Les points figuratifs s'étendent sur une bande comprise entre 5,5 et 18,7 cps et traduisent la grande dispersion des teneurs en radioéléments normaux suivant les individus. Des chiffres plus faibles traduiraient des carences en potassium (1) ; des chiffres supérieurs traduiraient un excès de potassium ou une contamination au césium (les autres étant exclues). Il est possible d'en faire la moyenne statistique des activités spécifiques lues par catégorie de sujet (homme ou femme). Si le nombre d'individus examinés dans chaque catégorie est suffisant, cette moyenne doit être constante car les teneurs en K et Cs le sont approximativement dans un large domaine de variation de G.

Ces moyennes sont faites en comptant pour chaque catégorie le nombre de points figuratif existant dans le domains de variations de G et en en prenant les 2/3. On obtient ainsi sur la figure une bande de dispersion statistique qui laisse subsister 1/6 des cas avec une activité spécifique inférieure et 1/6 avec une activité spécifique supérieure. L'ordre de grandeur de $\frac{\sigma}{A}$ est ± 17,5 p. 100 et on constate que, à cette dispersion près qui peut être attibuée pour les 2/3 à la dispersion naturelle des teneurs et pour 1/3 à l'imprécision des mesures, le rendement de comptage est pratiquement indépendant du coefficient G, c'est-à-dire de sa forme extérieure.

On obtient ainsi un test de la géométrie adoptée que nous considérons comme convenable compte tenu de la place disponible et de la nécessité d'obtenir un rendement géométrique suffisant. Un autre test consiste à faire une étude de reproductibilité en tenant compte des conditions physiologiques des sujets suivis (évolution du poids, période de la digestion, etc ...). Nous n'avons que peu d'expérience sur les résultats de ce dernier test qui a été entrepris par le laboratoire d'Argonne [42] avec une position très voisine de celle que nous utilisons. En ce qui nous concerne, nous avons effectivement trouvé les mêmes activités spécifiques à 6 p. 100 près sur une personne examinée 3 fois en une période de 18 mois sans tenir compte de son état physiologique. Les étalonnages effectués sur mannequin (paragraphe 7. 2. 2.) nous ont également montré que la reproductibilité en fonction des différences de positionnement, toujours possibles sans précautions particulières, était de l'ordre de 5 p. 100.

7. 1. 3 - Cas des spectres effectués cristal collimaté.

Le sujet est placé sur le brancard dont le plan est à 30 cm de l'ouverture du collimateur dans les appareils 2 et 3. Dans l'appareil 4, le collimateur peut être abaissé jusqu'à toucher le

---

(1) Ce contrôle a été effectué dans le cas de certaines maladies [15].

corps du sujet. Dans tous les cas, il est possible d'examiner successivement les différentes parties du corps en déplaçant le brancard à condition de laisser la porte de l'enceinte blindée ouverte et de refaire le bruit de fond en conséquence.

Nous étudierons au paragraphe consacré à l'étalonnage l'efficacité de cette position ; cependant nous n'avons pas l'expérience d'examens en cette position dont l'intérêt serait surtout de préciser un diagnostic de contamination semi-localisée.

Il est apparu une autre utilité à l'usage du collimateur. On constate que -malgré la douche préalable à chaque examen- il est difficile d'effectuer une décontamination totale des parties externes d'un individu particulièrement en ce qui concerne les cheveux et les mains. Or les étalonnages supposent qu'il n'y a pas de contaminations externes. Compte tenu de ce que les mains et la tête ne contribuent que peu au comptage total d'une personne (comme indiqué au paragraphe suivant), il est facile de vérifier rapidement si la radioactivité reçue n'est pas en partie due à des contaminations externes résiduelles : on met en place le collimateur et le sujet est prié de mettre les mains derrière la tête ; dans ces conditions, on ne doit pas enregistrer de diminution importante du taux de comptage ; s'il n'en est pas ainsi c'est qu'il y a contamination externe et il est possible de l'estimer.

7.2 - L'ETALONNAGE

7.2.1 - Etalonnage in situ.

Il est possible pour certains radioéléments de procéder à un étalonnage exact sur la personne examinée elle-même : il faut alors lui faire absorber un isotope émettant une énergie voisine dont la pseudo période (résultante de la période radioactive et de la période d'élimination biologique) soit courte et dont la quantité maximum admissible dans l'organisme soit grande. Si ces conditions sont remplies, on peut, après avoir contrôlé spectrographiquement la pureté du radioélément fourni, faire ingérer des quantités suffisantes pour obtenir une bonne précision.

Ceci a été effectué en utilisant le ^{42}K et le ^{24}Na. Au bout de quelques haures après l'ingestion il y a équilibre entre l'isotope radioactif et les potassium ou sodium naturels du corps et on peut faire des mesures, soit en employant la géométrie choisie pour l'examen normal soit en utilisant la méthode dite de l'arc d'un mètre.

Dans cette dernière méthode, décrite par L. D. Marinelli en 1955 [43], le patient est couché sur un berceau circulaire de 1 mètre de rayon au centre duquel se trouve le détecteur et, pour tenir compte de la dissymétrie éventuelle de la répartition du produit ingéré (ou plus exactement du comptage émergeant du corps) le patient est alternativement couché sur le dos et sur le ventre. On obtient ainsi une mesure indépendante de la taille du sujet et facilement reproductible.

Le potassium et le sodium sont particulièrement intéressants pour ces mesures car ils se répartissent convenablement dans l'ensemble du corps, le potassium étant principalement à l'intérieur des cellules musculaires et le sodium dans les liquides extérieurs ; cependant, même si la répartition n'était pas homogène, la méthode de l'arc d'un mètre donnerait une indication valable aux différences d'absorption près. Son seul inconvénient est de supposer une activité spécifique assez forte.

L'examen avec le sodium 24 donne des résultats sur une gamme étendue d'énergie car il émet deux γ à 2,76 et 1,37 MeV et produit un effet de paire important.

Dans tous les cas, il est possible de comparer les résultats obtenus par la méthode de l'arc d'un mètre et ceux obtenus en position normale d'examen et d'en déduire les rendements. Ce travail a notamment été effectué par C. E. Miller de façon assez complète (1961) (loc. cit. [43]). Par interpolation on pourra calculer ceux-ci pour des énergies intermédiaires et en déduire les quantités présentes d'autres radioéléments.

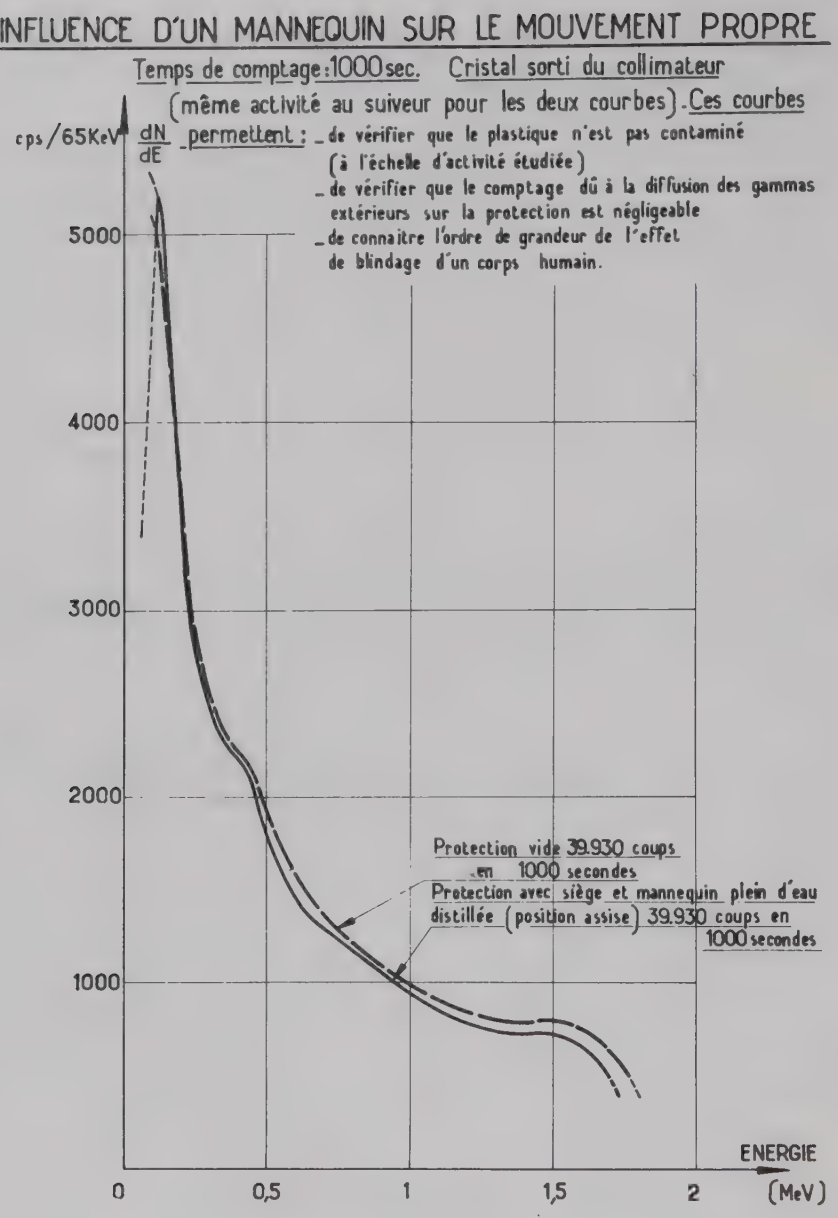
Remarque - Il faut dans le cas du ^{42}K tenir compte de la modification du spectre apportée par le rayonnement β (paragraphe 8.3.2.). Ajoutons que le rapport pic sur total obtenu dans le cas du ^{24}Na *in situ* est avec l'appareil n° 4 de 20 p. 100 pour 2,76 MeV et 25 p. 100 pour 1,38 MeV.

7.2.2 - Utilisation de mannequins.

1/ Description du mannequin utilisé.

Nous avons fait construire un mannequin en métière plastique ayant grossiérement la forme humaine (voir photo figure 6 page 28). Le plastique utilisé est du chlorure de polyvinyle chargé et nous avons vérifié qu'il n'introduisait pas de comptage. Les mouvements propres effectués avec

Fig. 31



ce mannequin plein d'eau désionisée (spectre figure 31) ont permis de verifier que la présence d'une masse importante dans l'appareil n° 2 n'apportait pratiquement pas d'augmentation de comptage par diffusion de γ extérieurs parvenant des ouvertures. Il n'y a pas non plus d'accroissement notable du coefficient apparent d'atténuation de la protection. Enfin nous avons indiqué paragraphe 4.1.2 qu'il n'y avait pas à craindre un rayonnement rétrodiffusé important vers le détecteur, les parois du blindage étant toujours à plus de 5 cm de la source.

Le mannequin étant articulé a été utilisé avec la géométrie décrite au paragraphe précédent.

Les proportions relatives des éléments qui le constituent respectent approximativement celles d'un homme standard ; elles sont :

- Tête cylindrique volume 4 litres
- Poitrine parallélipipédique " 21 litres plus "poumons"

- Bassin pyramidal volume 8 litres
- Cuisse cylindriques " 6 litres chacune

(rigidement liées au bassin)

- Jambes cylindriques 5,5 litres chacune
- Avant bras et bras cylindriques 2 litres chacun

d'où Volume total : 64 litres
Poids vide : 13 kg

2/ Méthode employée.

Nous avons utilisé ce mannequin pour l'étalonnage de l'appareil n° 2 en positions assises et couchée avec des solutions de ^{137}Cs et de ^{40}K. Dans les deux cas, le "fantôme" étant préalablement rempli d'eau désionisée, nous avons remplacé successivement pour chaque élément l'eau par la solution active.

En position couchée, nous avons étudié la réponse du détecteur pour différentes positions du cristal dans le collimateur, le mannequin étant centré par rapport à celui-ci.

Les résultats doivent, pour des mélanges homogènes, être indépendants de la concentration. Nous avons donc, pour améliorer la précision, utilisé des solutions relativement actives. Les mesures étaient effectuées en 1 000 secondes. Les solutions utilisées sont les suivantes :

Solution potassique -

KCl R. P. à 120 g/l en K naturel pour les examens éléments par éléments et 41 g/l pour les examens entiers.

Solution légèrement acidifiée en HCl.

Solution de césium -

(^{137}Cs Cl) en solution à $1,3.10^{-8}$ Ci/l obtenue par dilutions successives d'une solution mère étalonnée. Toutes les opérations ont été effectuées dans la verrerie jaugée de précision en présence d'entraineurs (Cl. Cs R. P. inactif et HCl R. P.).

Nous avons vérifié que, dans aucun cas, il n'y avait adsorption des sels radioactifs par les parois (comptage identique sur les récipients et éléments de mannequins vides avant et aprés l'utilisation). Les étalonnages effectués correspondent donc bien à des répartitions homogènes.

Nous avons également vérifié que le mannequin en place était symétrique par rapport au plan longitudinal médian de la protection.

3/ Résultats obtenus.

Les figures 32 et 33 présentent quelques uns des spectres obtenus dans ces conditions respectivement avec le césium et le potassium.

Nous pouvons en déduire le tableau page suivante.

Ce tableau permet de comparer les efficacités de détection pour chaque partie du corps. Cette comparaison peut se faire en étudiant les rapports des pourcentages de comptage aux pourcentages de poids.

Dans le cas du potassium on trouve que ce rapport est voisin de 1 pour le bassin, les cuisses, les avant bras et les bras ; il est très inférieur à 1 pour la tête, inférieur à 1 pour les jambes et supérieur à 1 pour la poitrine. La différence de 4 p. 100 environ qui existe entre la somme des comptages des différents éléments et le comptage du mannequin entier est due à la différence de densité des solutions employées dans ces deux cas (celle utilisée pour le mannequin entier étant une dilution au 1/3 de celle utilisée pour les éléments). Il en résulte une diffusion plus grande dans le cas des éléments séparés.

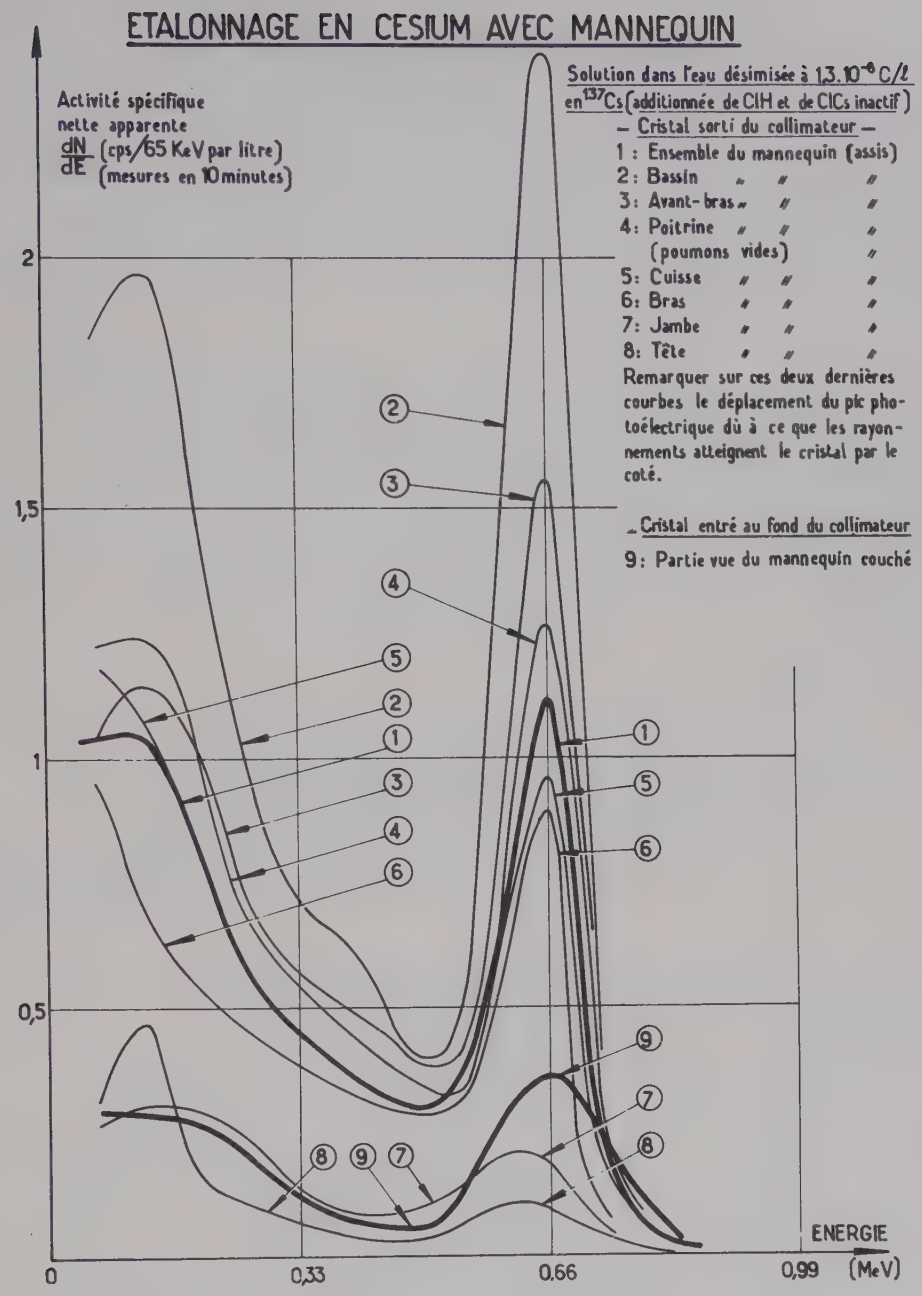
Les résultats relatifs au césium montrent que -pour cette énergie- les différences entre les rapports trouvés précédemment s'accusent beaucoup. Cela semble du aux effets Compton successifs obtenus en plus grande quantité pour le Cs que pour le K comme le montrent les valeurs des rapports Pic/Total.

Tableau donnant les contributions relatives au comptage des différents éléments d'un mannequin

(appareil n° 2)

Eléments	Poids Pds total (p. 100)	Potassium : concentration homogène 125 g/l					Césium : concentration homogène $1,30.10^{-8}$ Ci/l				
		Pic (cps. 1)	Total (cps. 1)	Pic / Total (p. 100)	Contribution (cps)	Contribution (p. 100)	Pic (cps. 1)	Total (cps. 1)	Pic / Total (p. 100)	Contribution (cps)	Contribution (p. 100)
Poitrine (sauf poumons)	33	2,34	11,1	21,1	233	44,6	1,86	8,35	20,7	175,4	38,6
Bassin	12,5	1,96	9,7	20,3	77,6	15,5	3,9	12,95	30,5	103,6	22,8
Avant-bras (moyen)	3,1	1,81	9,4	19,6	2×18,8	3,8	2,17	8,72	25,0	2 × 17,4	3,8
Bras (moyen)	3,1	1,42	9,2	15,3	2×18,4	3,7	1,10	6,25	17,6	2 × 12,5	2,75
Jambe (moyenne)	8,6	0,28	1,17	24,3	2 × 6,43	1,3	0,38	1,84	20,8	2 × 10,1	2,2
Cuisse (moyenne)	9,4	1,54	7,84	19,7	2×47	9,4	1,46	7,28	20,0	2 × 43,8	9,65
Tête	6,3	0,30	1,44	22,5	5,76	1,15 (somme des contr. partielles	0,15	0,61	20,0	2,4	0,5 (somme des contr. partielles
Entier	100	1,55	7,44	20,9	497,6		1,48	7,15	20,7	449	
			→	× 64 =	476,2			→	× 64 =	457,6	

Fig. 32



En position allongée, nous trouvons pour le Césium :

Cristal sorti du collimateur :

Pic : 149,5 cps Pic/Total : 26,7 p. 100 Total : 560 cps

Cristal arasant le collimateur :

Pic : 86 cps Pic/Total : 27,2 p. 100 Total : 315 cps

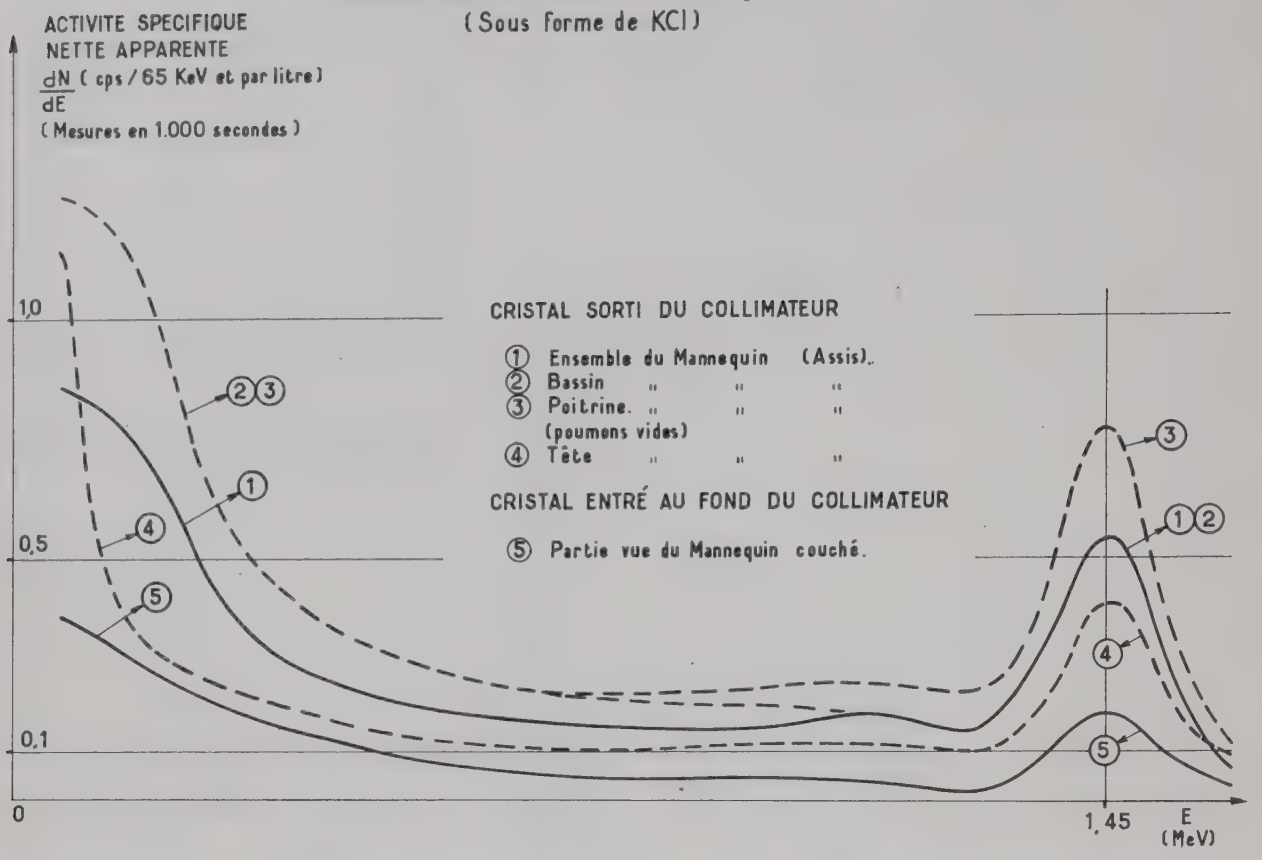
Cristal en haut du collimateur :

Pic : 43,6 cps Pic/Total : 25,5 p. 100 Total : 172 cps

Fig. 33

ETALONNAGE EN POTASSIUM AVEC MANNEQUIN

Solution dans l'eau désionisée à 125 g/l de K
(Sous forme de KCl)



Pour le potassium :

Cristal sorti du collimateur :

Pic : 122,4 cps Pic/Total : 23,5 p. 100 Total : 519 cps

Cristal arasant le collimateur :

Pic : 65,7 cps Pic/Total : 24,5 p. 100 Total : 268,5 cps

Cristal en haut du collimateur :

Pic : 30,7 cps Pic/Total : 22,9 p. 100 Total : 134,3 cps

On remarque que le rapport Pic/Total s'améliore quand on remonte le cristal dans le collimateur. La première position n'est donnée que comme comparaison avec les résultats obtenus assis. Les résultats dans le cas du cristal collimaté sont compatibles avec ceux obtenus pour la poitrine et l'abdomen en position assise.

Notons enfin les résolutions mesurées : 17 p. 100 environ avec le ^{137}Cs et 12,5 p. 100 avec le ^{40}K.

4/ Calcul des rendements.

Les rendements sont déduits des mesures effectuées par nous sur mannequin dans l'appareil n° 2, de celles effectuées sur mannequin en pièce blindée ainsi que des étalonnages in situ en pièce blindée avec le ^{42}K et sur l'appareil n° 4 avec le ^{24}Na.

Dans ces derniers cas le sujet était de type médioligne.

Nous avons trouvé pour le sujet entier, en position assise : 158 cps reçus pour 2 625 g de potassium naturel, soit 2 625 × 3,5 # 9 150 γ/s d'où un rendement de 1,75 p. 100 pour le potassium. Le même calcul effectué sur le césium donne 1,6 p. 100.

Les rendements obtenus sur l'appareil n° 4 sont respectivement 1,5 et 1,3 p. 100 tandis que dans la pièce blindée par 20 cm de fer utilisée par le Département de la Protection Sanitaire au CEN Far, il est de 1 p. 100 en K. Il est normal que le rendement moyen soit plus élevé dans l'appareil n° 2 car, à cause du collimateur fixe, le cristal est plus rapproché du patient. La contrepartie en est un manque d'homogénéité de l'efficacité en fonction des différents éléments du corps. De même le rapport Pic sur Total varie d'un appareil à un autre, c'est ainsi qu'il est de 0,33 pour le césium avec l'appareil n° 4 et compris entre 0,21 et 0,27 dans l'appareil n° 2.

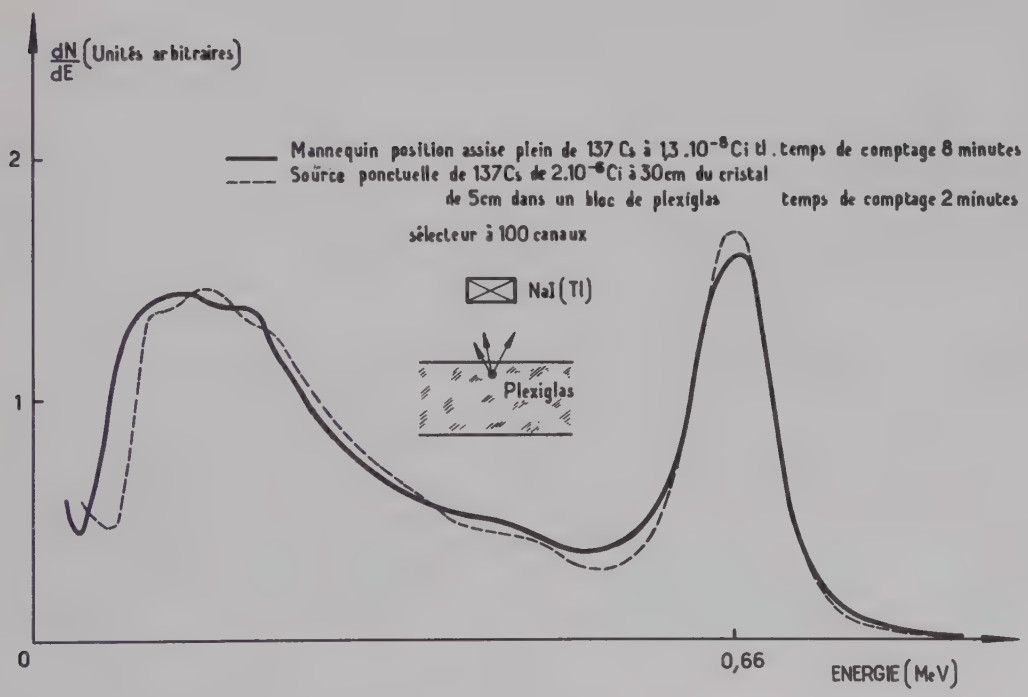
Les rendements exprimés ci-dessus sont le produit du rendement moyen du cristal pour l'énergie considérée, de l'absorption et du rendement géométrique ; il n'est donc pas étonnant que ces chiffres soient faibles.

7. 2. 3 - Etalonnage rapide.

Connaissant le rendement pour une énergie donnée, il est possible d'effectuer très rapidement beaucoup de vérifications et d'estimations en se servant uniquement d'une source ponctuelle et d'un bloc de plexiglas tel que celui dont nous avons montré l'utilisation au chapitre 8. C'est ainsi que l'on contrôlera, figure 34, la bonne concordance existant entre le spectre obtenu en 2 minutes avec 2 μCi de ^{137}Cs enfoncé de 5 cm dans un bloc de plexiglas de 28 cm d'épaisseur (la source étant à 30 cm du détecteur et sur son axe) avec celui obtenu en 8 minutes avec le mannequin en position assise et plein d'une solution à $1,3.10^{-8}$ Ci/l du même radioélément.

Fig. 34

ETALONNAGE RAPIDE DE L'APPAREIL



7.3 - LA PRECISION

Les erreurs commises ont diverses origines ; citons :

- Les fluctuations aléatoires du taux de comptage (erreur statistique)
- Le manque de résolution de l'appareil
- Les dérives
- Les fluctuations du mouvement propre
- L'erreur commise sur l'étalonnage (calcul des rendements et reproductibilité de la géométrie).

Toutes ces causes d'erreur interviennent sur la détermination des quantités de radioéléments présents, les trois premières intervenant sur leur identification (la première et la troisième parce qu'elles risquent de modifier la forme des spectres).

7.3.1 - Erreur statistique : détermination du temps de comptage.

1/ Mesures avec le cristal de 20 cm de diamètre.

Supposons les temps de mesure du mouvement propre et de l'échantillon égaux, ce qui est le cas utilisé pratiquement nos sélecteurs ne permettent pas encore de stocker un certain nombre de mouvements propres mesurés avec précision pour différentes activités au suiveur d'ambiance. L'erreur statistique relative s'exprime (chapitre 3) par :

$$y^2 = \frac{1}{t\,\nu}\left[1 + \frac{2\,\beta}{\nu}\right]$$

t : temps de mesure

ν : taux de comptage net de l'échantillon

β : taux de comptage du bruit de fond (pour une bande d'énergie donnée).

Considérons trois cas :

- Comptage total : de 100 keV à 1,6 MeV (cristal sorti du collimateur)

$\beta \sim 40$ cps (activité moyenne)

$\nu \sim 10$ cps

Il vient :

$$y^2 = \frac{0,9}{t}$$

un comptage rapide de 100 secondes donnera l'activité globale avec une précision égale à :

$$y = 0,095 \qquad \text{soit } 9,5 \text{ p. } 100$$

Sur ce temps, les dérives et les fluctuations de mouvement propre sont négligeables ; en revanche, le rendement est difficile à connaître avec exactitude (pour une activité "normale" on pourrait le prendre intermédiaire entre celui obtenu pour le ^{137}Cs et celui pour le ^{40}K). Cependant l'intérêt d'une telle mesure est de permettre un contrôle systématique rapide d'un groupe important, le contrôle complet en vue de la détermination des contaminations ne se faisant que pour les sujets dépassant nettement le niveau normal de radioactivité.

- Comptage potassium.

Il s'effectue à partir de la mesure de la surface du pic photoélectrique du ^{40}K. On peut admettre qu'il n'y a pas d'éléments perturbateurs d'énergie suffisamment proche de 1,45 MeV pour déformer le pic ; quant à la contribution des énergies plus élevées elle reste faible et il est facile d'en tenir compte.

La bande d'énergie choisie correspond théoriquement à 1,84 l (1/2) si l (1/2) est la largeur à mi-hauteur du pic ; pratiquement elle correspond à un nombre exact de canaux choisi de préférence un peu plus faible pour éviter les superpositions avec les pics voisins.

Si nous admettons que la résolution du détecteur pour 1,45 MeV est de 10 p.100, 1,84 l 1/2 = 268 keV. Nous prenons généralement une bande allant de 1 325 à 1 575 keV (soit 250 keV en 4 canaux de 63 keV). On a alors :

$\beta \sim$ 4 cps (mouvement propre élevé)

$\nu \sim$ 0,8 cps (cas peu favorable)

$$y^2 = \frac{11}{0,8} \cdot \frac{1}{t} = \frac{13,75}{t}$$

L'écart statistique sur la valeur de la mesure est de 12 p. 100 pour un comptage de 1 000 secondes et de 15 p. 100 pour un comptage de 10 minutes.

L'erreur statistique sur l'activité globale est alors de l'ordre de 1 p. 100, c'est-à-dire négligeable devant les autres causes d'erreur.

Comme nous avons indiqué qu'il n'était pas raisonnable de faire des mesures longues à cause des fluctuations de bruit de fond, on voit que dans le meilleur des cas la détermination du potassium sera à 10 p. 100 près environ.

- Comptage césium.

Nous considérons la bande 565 à 755 keV (3 canaux). Du comptage de cette bande, il faut déduire la contribution des énergies supérieures ce qui se fait avec la précision de l'étalonnage.

Nous admettons ici : $\beta \sim$ 4,5 cps

$\nu \sim$ 2 cps

$$y^2 = \frac{2,75}{t}$$

Pour une mesure de 10 minutes, l'erreur statistique sera de l'ordre de 7 p. 100 et de 5,3 p. 100 pour une mesure de 1 000 secondes. La précision statistique est meilleure que dans le cas précédent, mais la détermination de la surface du pic est moins précise.

Nous pensons en définitive qu'un temps de mesure de 10 à 20 minutes réalise un compromis acceptable entre la nécessité d'augmenter le temps pour améliorer la précision statistique et les risques d'augmentation d'autres causes d'erreur avec le temps (dérives, fluctuations de mouvement propre). Cette durée permet une cadence de passage dans l'appareil de 3 personnes par heure environ. L'imprécision statistique sur les constituants radioactifs de l'homme normal (Ra et Th excepté) est comprise entre 6 et 10 p. 100. Celle sur des contaminants sera d'autant meilleure que leur importance sera plus grande ; en première approximation on peut dire qu'elle sera d'environ 10 p.100 pour des énergies comprises entre 500 keV et 1,5 MeV et des teneurs de l'ordre de 10^{-10} Ci/kg en γ .

La sensibilité limite est d'environ 10 fois plus faible, soit 10^{-11}Ci/kg en γ . (Pour l'homme(1) et des mesures du 1/4 d'heure, ce chiffre correspond à une erreur de l'ordre de 60 p. 100).

2/ Mesures avec un cristal de 10 cm de diamètre.

Nous avons essayé un cristal de 10 cm de diamètre et 10 cm de hauteur à monture aluminium équipé d'un photomultiplicateur 54 AVP. Cet ensemble a été monté à la place du détecteur habituel et utilisé dans la même position que celui-ci.

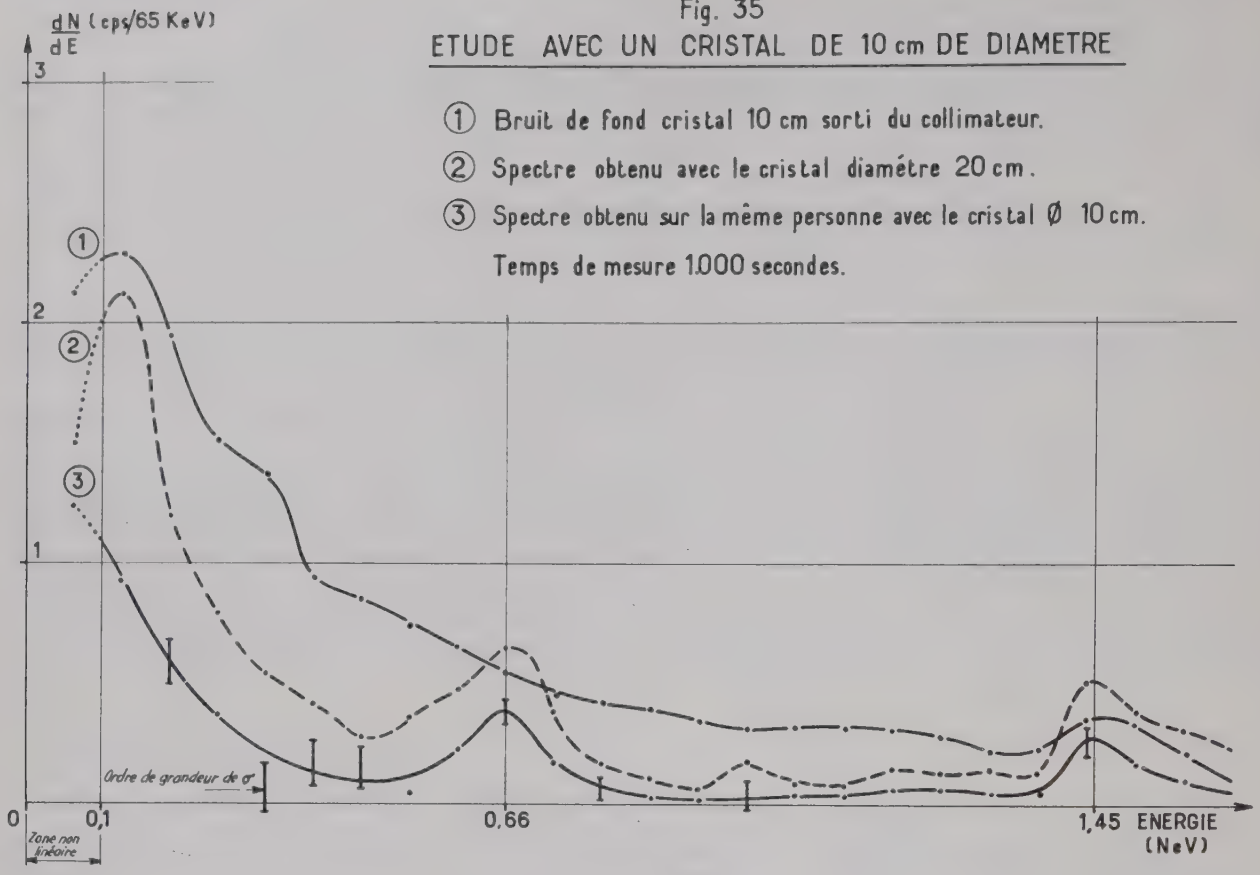
Le bruit de fond mesuré entre 100 keV et 1,6 MeV est de 13 cps la face inférieure du cristal étant dans le plan de l'ouverture du collimateur et de 17,7 cps le cristal étant sorti du collimateur. Dans ces conditions, le comptage obtenu sur une personne de type médioligne adulte (homme de 63 kg et 1,72 m) est de 5,2 cps en position assise. La même personne étudiée dans la même position avec le cristal de 20 cm de diamètre avait un comptage de 11,4 cps (pour un bruit de fond de 41,4 cps).

---

(1) On peut envisager des mesures plus longues avec des sources plus denses placées contre le détecteur (cf. Chapitre 9).

Fig. 35

ETUDE AVEC UN CRISTAL DE 10 cm DE DIAMETRE



La figure 35 montre le spectre du bruit de fond et le spectre net de cette personne (obtenus en 1 000 secondes) avec le cristal Ø 10 cm et, à la même échelle le spectre obtenu avec le cristal Ø 20 cm. On se rend compte que la mesure en 1 000 secondes n'est plus suffisante pour déterminer le comptage dans une bande étroite sur le spectre d'un homme normal.

On remarquera que le rapport des surfaces des deux cristaux non blidées par le collimateur est de 2,4 et le rapport des volumes 2. Le rapport des mouvements propres est 2,35 ; celui des comptages nets sur un sujet est 2,2. Ces valeurs sont en concordance si on tient compte que les surfaces latérales des cristaux jouent partiellement le même rôle dans les deux cas.

7. 3. 2 - Erreur due au manque de résolution.

1/ Imprécision sur la position des pics.

Elle peut introduire un doute sur la nature d'un contaminant. Pratiquement il est rare que l'interrogatoire du sujet ne permette pas de lever ce doute.

2/ Chevauchement de pics d'énergies voisines.

Il a pour conséquence une indétermination sur la surface de chaque pic avec, en contre-partie, une augmentation du taux de comptage net par canal (diminution de l'erreur statistique).

Le chevauchement est particulièrement gênant s'il est dû à un contaminant d'énergie voisine et d'intensité au moins égale à une émission de l'homme normal. C'est la cas du ^{95}Zr-Nb contaminant principal parmi les produits de fission. Ils émettent 3 γ d'intensités voisines à 724, 757 et 768 keV. La demi largeur de la bande spectrale qui en résulte débute avant 700 keV. En cas de contamination, l'intensité est souvent plus forte que celle du césium et les contributions de chaque élément sont difficiles à estimer. Nous montrerons un exemple de ce cas au chapitre 8.

Si nécessaire un étalonnage avec mannequin, effectué de façon à reproduire la forme exacte (compte tenu de l'erreur statistique) du pic composé peut permettre de préciser les teneurs.

7. 3. 3 - Dérives et fluctuatuations de mouvement propre.

Avec des temps de mesure n'excédant pas 20 minutes et le contrôle de l'activité ambiante, on peut espérer que ces facteurs n'introduisent pas d'erreur supérieure à 3 p. 100. Elle est le plus souvent très inférieure.

7. 3. 4 - Erreur d'étalonnage.

1/ Variation du rendement avec la taille des sujets.

Ce facteur s'introduit si le rendement est estimé par exemple à partir d'étalonnages sur mannequins. Nous admettons à la suite de l'étude exposée, paragraphe 9. 2. , que les rendements ne varient pas pour un type donné de sujet de plus de 3 p. 100 entre les différentes tailles.

2/ Reproductibilité des mesures.

Le positionnement du siège d'examen par rapport au détecteur est réalisé automatiquement. La forme du siège est telle que les sujets ont tendance pour obtenir le maximum de confort à s'y placer toujours de la même manière. Dans ces conditions, on peut espérer que la reproductibilité des mesures n'introduit qu'une erreur faible à condition toutefois que les mains et les avants bras soient toujours dans la même position.

Nous avons en particulier trouvé une différence de 2 p. 100 entre les spectres nets d'un même sujet (non contaminé) effectués à 5 mois d'intervalles sans prendre de précautions particulières.

Cette erreur et les 2 précédentes apparaissent donc être dans le cadre de l'imprécision d'origine statistique.

3/ Erreur d'étalonnage due à la répartition des émetteurs.

Sauf dans le cas des étalonnages in situ, les rendements sont calculés à partir d'une répartition homogène dans un mannequin. La comparaison des rendements obtenus in situ avec le ^{42}K et le ^{24}Na et du rendement calculé à partir d'un mannequin montre que cette hypothèse est suffisante pour le ^{137}Cs et le potassium. (Les mesures ont notamment été effectuées en pièce blindée au CEN FAR).

Yagamata a publié [44] en 1960 une étude de la répartition du ^{137}Cs dans l'organisme effectuée par comptage β des cendres de tissus et qui montre une teneur voisine dans les muscles et les os et comprise entre le 1/3 et les 2/3 de celle des principaux viscères.

Ajoutons qu'il existe des mannequins articulés très perfectionnés où sont représentés avec leur forme les principaux organes chacun d'eux pouvant être remplis avec des solutions radioactives différentes. Ils permettent de franchir un pas considérable dans le domaine de l'étalonnage. Leur prix cependant conduit à les réserver à des études médicales particulières et nous n'avons pas connaissance des résultats qui ont pu ainsi être obtenus.

VIII

MESURES SUR LE CORPS HUMAIN ÉTUDE DES SPECTRES

Nous présentons dans ce chapitre un extrait des résultats de mesures sur le corps humain obtenus à Saclay (appareil n° 2, Service d'Electronique Physique) et à Marcoule (appareil n° 4, Service Médical). Les appareils diffèrent légèrement quant au rendement mais ont des résolutions du même ordre (cf. paragraphe 7.2.2.4) et les activités sont pondérées pour tenir compte des différences.

8.1 - SPECTRES DE PERSONNES NON CONTAMINEES

8.1.1 - Activité en fonction du poids.

La figure 36 présente, pour 90 mesures, le comptage net total en fonction du poids suivant le mode de présentation utilisé fréquemment notamment à Los Alamos [22].

La dispersion des teneurs en radioéléments apparaît immédiatement sur ce graphique. Notons que tous les sujets examinés sont adultes, d'un âge inférieur à 65 ans, la très grande majorité d'entre eux ayant entre 20 et 35 ans.

8.1.2 - Etude de la teneur en potassium.

Elle est évaluée sur chaque spectre à partir du nombre de coups reçus dans le pic photoélectrique en tenant compte des rapports pic sur total et des rendements obtenus par étalonnage. L'estimation de la surface du pic est faite en tenant compte de la faible contribution Compton des énergies supérieures (radium, thorium).

Nous avons trouvé des teneurs en poids variant de 0,8 à 3,4 pour 1 000 la teneur moyenne étant de 1,63 pour 1 000 chez les hommes et de 1,32 pour 1 000 chez les femmes.

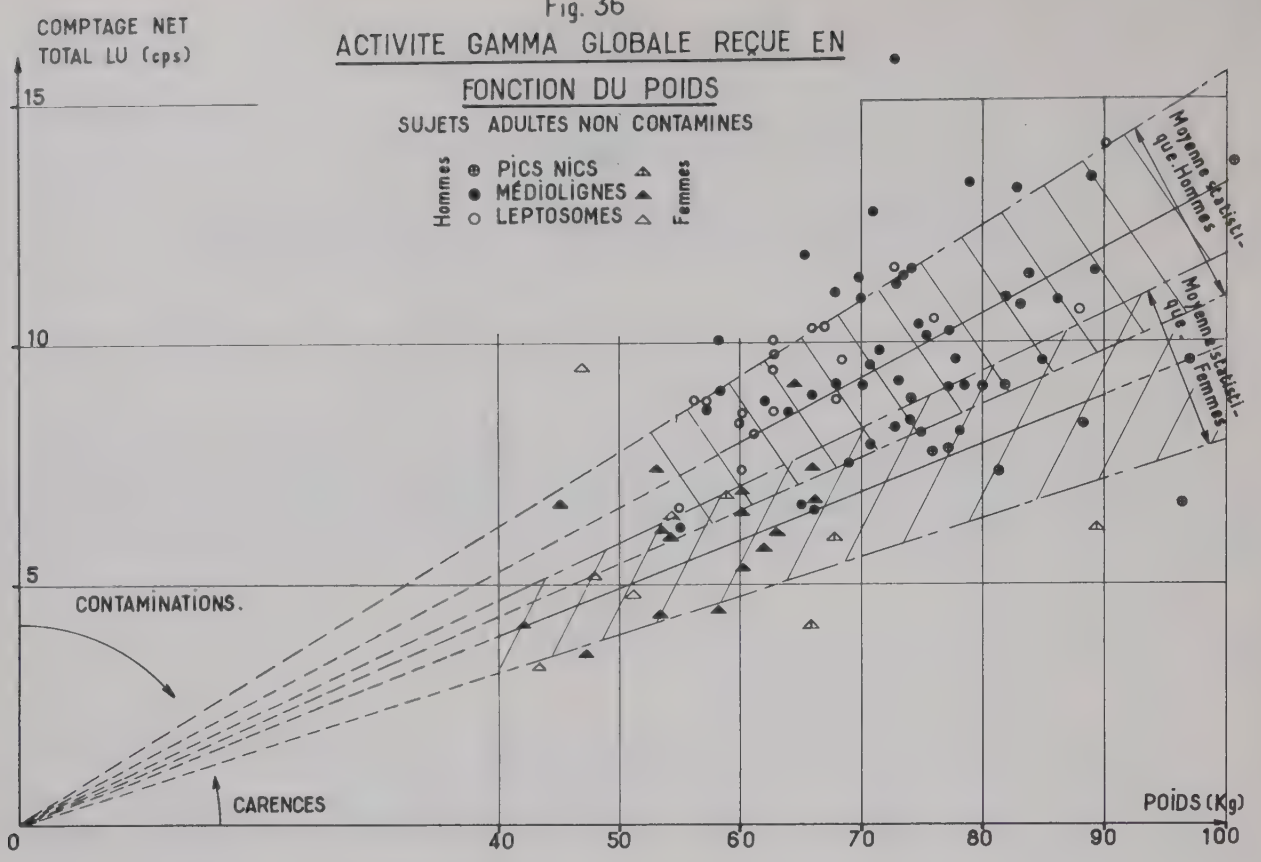
Les teneurs obtenues sont en moyenne plus faibles pour les pics nics que pour les autres types (cf. paragraphe 9.2.1).

Il ne nous était pas possible d'effectuer une étude statistique en fonction de l'âge étant donné les sujets dont nous pouvions disposer. Citons à ce propos les travaux de Van C. O. Onstead en Allemagne [45] et ceux de Anderson et Langham aux Etats-Unis [46]. Ces auteurs ont effectué l'étude avec un compteur 2π analogue à celui de Los Alamos (280 l de scintillateur, 6 P.M. de ϕ 40 cm, blindage e = 7,5 cm) qu'ils ont mis au point au laboratoire de recherche de l'armée américaine à Landstühl (Palatinat). Ils ont trouvé que la teneur en potassium est maximum vers 8 à 9 ans puis chute brutalement au moment de la puberté pour continuer à décroître lentement ensuite :

Vers 13 ans	H : 2,6 p. 1000	F : 2,3 p. 1000
18 ans	H : 2,4	F : 1,9
20 ans	H : 2,3	F : 1,8
30 ans	H : 2,2	F : 1,7
40 ans	H : 2,1	F : 1,6
50 ans	H : 2,0	F : 1,5
70 ans	H : 1,8	F : 1,45

On remarque que leurs résultats sont plus élevés que les notres.

Fig. 36



8.1.3 - Etude de la teneur en césium.

Elle est évaluée de la même façon que celle en potassium. Cependant la mesure est ici moins précise puisqu'il faut déduire du comptage obtenu dans la bande de césium la contribution des énergies supérieures : Par étalonnage nous avons constaté qué la contribution du potassium était le tiers du comptage obtenu pour cet élément dans le pic photoélectrique. En ce qui concerne l'estimation du radium et du thorium, elle est beaucoup plus difficile mais heureusement leur contribution au comptage est en général faible : nous avons admis qu'elle était le cinquième du comptage obtenu entre les bandes du césium et du potassium. Néanmoins, on ne peut se contenter de cette approximation pour les spectres qui montrent une teneur relativement élevée car on ignore à priori la répartition Ra - Th et le radium a un pic à 609 keV qui risque d'être confondu avec celui du césium. De tels cas doivent être étudiés à part.

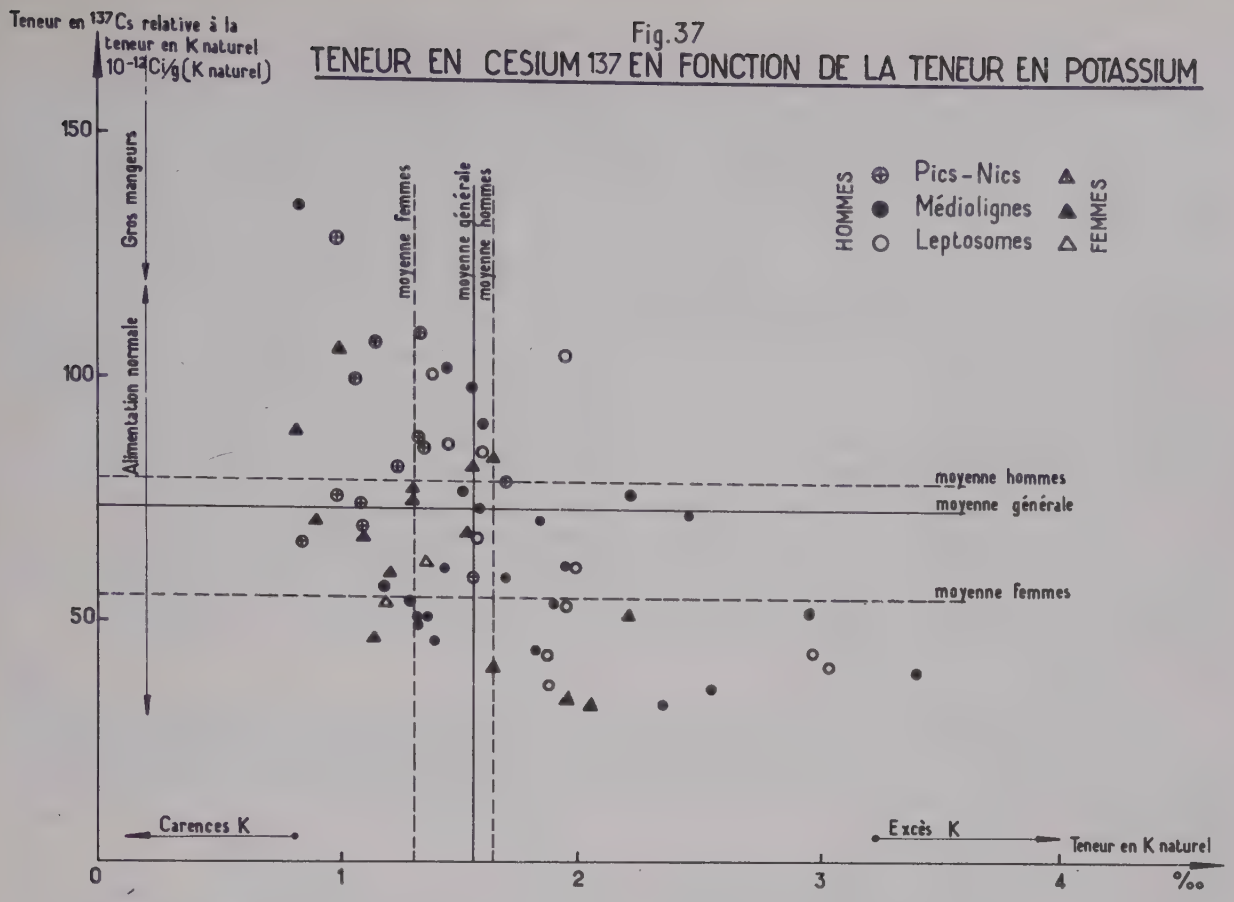
La teneur en césium 137 est du même ordre de grandeur que celle en potassium (activités de l'ordre de 100 p. Ci/kg). Le césium suivant le même métabolisme que le potassium, il est intéressant de l'exprimer en p. Ci de césium par g de potassium ainsi que nous l'avons fait sur le figure 37. Il ne semble pas y avoir de corrélation entre les deux teneurs la moyenne pour les femmes étant de 55.10^{-12} Ci/g (K naturel) (compte non tenu des femmes enceintes dont la teneur apparente en césium est très faible), et de 78.10^{-12} Ci/g (K naturel) pour les hommes. Les chiffres extrêmes obtenus sont 60 et 200 p. Ci/g (K). Les chiffres élevés sont le fait de forts mangeurs à tempérament sanguin, le césium provenant essentiellement de l'alimentation d'origine animale (viande, produits laitiers).

La teneur moyenne en césium rapporté au potassium a évolué d'année en année au fur et à mesure du développement des expériences atomiques militaires. C'est ainsi qu'il a été trouvé :

USA 1956	191	mesures à	Los Alamos	moyenne	41.10^{-12} Ci/g (K)
USA 1957	391	"	"	"	44 "
USA 1958	793	"	"	"	56 "
USA 1959	656	"	Washington	"	68 "
Allemagne 1959	1000	mesures à	Landstühl	moyenne	80.10^{-12} Ci/g (K)
France fin 1960	90	mesures à	Marcoule	"	73. "

Fig.37

TENEUR EN CESIUM 137 EN FONCTION DE LA TENEUR EN POTASSIUM



On observe donc une augmentation progressive de la teneur moyenne en césium 137 de l'homme qui atteint un maximum vers les années 1959-1960. Ce maximum est de l'ordre de 10^{-10} Ci/g (K). La Q M A étant fixée à 30 µCi pour la totalité du corps soit environ 2.10^{-7} Ci/g (K) on voit que la teneur maximale correspond à un cinq centième de dose. Van Onstead [45] a calculé que cette teneur correspondait à une irradiation de l'ordre de 1,8 m Rem/an.

La teneur au 1er semestre 1962 est de l'ordre de 50.10^{-12} Ci/g (K). On remarque également que l'augmentation de la teneur en césium suit celle des retombées radioactives avec un décalage de plusieurs mois : le maximum de fin 1959 correspondant au maximum des retombées de 1958 qui a précédé l'arrêt des expériences militaires. On peut donc s'attendre à la suite de la reprise récente de ces expériences à une prochaine augmentation de la teneur.

8.1.4 - Mise en évidence du radium ou du thorium.

La quantité existante de ces éléments semble très variable suivant les individus et les régions où ils vivent. (Teneur en Ra des eaux de boisson).

Elle est beaucoup plus élevée en moyenne par exemple dans la région de Marcoule qu'à Saclay. Cependant elle reste toujours faible et sa mesure exacte est discutée. Celle-ci s'effectue généralement par comptage α de l'air exhalé à l'aide de ballons scintillateurs. La mesure par spectro γ est surtout intéressante dans le cas de contaminations. Elle est basée sur l'intensité des pics d'énergie élevée comme le 1,76 MeV du radium C et le 2,62 MeV du Th C". Chez l'homme normal, ces pics sont malheureusement très faible et il ne nous a pas été possible de les mettre en évidence dans l'appareil n° 2 à cause des fluctuations du bruit de fond. La mesure préconisée à Argonne s'effectue en plusieurs heures (avec possibilité d'interruptions) et en pièce blindée. Le rayonnement cosmique risquant théoriquement de provoquer des comptages parasites dans ces bandes, le détecteur est muni d'une couronne de compteurs cosmiques montés en anticoïncidence.

8.2 - ETUDE DE CONTAMINATIONS

Nous présentons trois cas :

8. 2. 1 - Contamination par le zirconium-niobium.

Le spectre obtenu est présenté figure 38. Les comptages aux basses énergies et dans la bande du césium apparaissent d'une intensité anormale. Le pic dans la zone du césium a son minimum décalé de 70 keV vers les hautes énergies.

L'interrogatoire du sujet a montré que la seule contamination possible était celle de produits de fission. Le mélange ^{95}Zr-Nb représentait 80 p. 100 de l'activité de ces produits dans le cas envisagé et les énergies sont celles observées sur le spectre.

Remarque - La forme du spectre en-dessous de 500 keV permet de prévoir la présence de traces de ^{103}Ru et ^{144}Ce en général présents avec le ^{95}Zr-Nb.

Une estimation de la quantité présente peut être faite graphiquement. (Elle pourrait être précise si on disposait du spectre du sujet avant contamination). Représentée figure 51 cette estimation conduit à un comptage dû au Zr-Nb double de celui dû au césium. Une valeur supérieure de la contamination A peut être calculée en admettant que le comptage dans le "pic" est entièrement à attribuer au contaminant. On trouve :

$$A = \frac{1}{600} \cdot 4\,600 \cdot 3 \cdot \frac{100}{1,3} \cdot \frac{1}{3,7.10^{10}} = 4,78.10^{-8} \text{ curie (en } \gamma \text{)}$$

600 : temps de comptage en secondes

3 : valeur supérieure du rapport total sur pic.

1,3 : valeur en p. 100 du rendement

Cette quantité est inférieure au centième de la quantité maximum admissible [17] (dose travailleurs). Une partie de la contamination était d'ailleurs externe le comptage dans le pic ayant diminué de 12,5 p. 100 en mettant les mains derrière la tête (diminution normale d'après étalonnage sur mannequin : 4 p. 100).

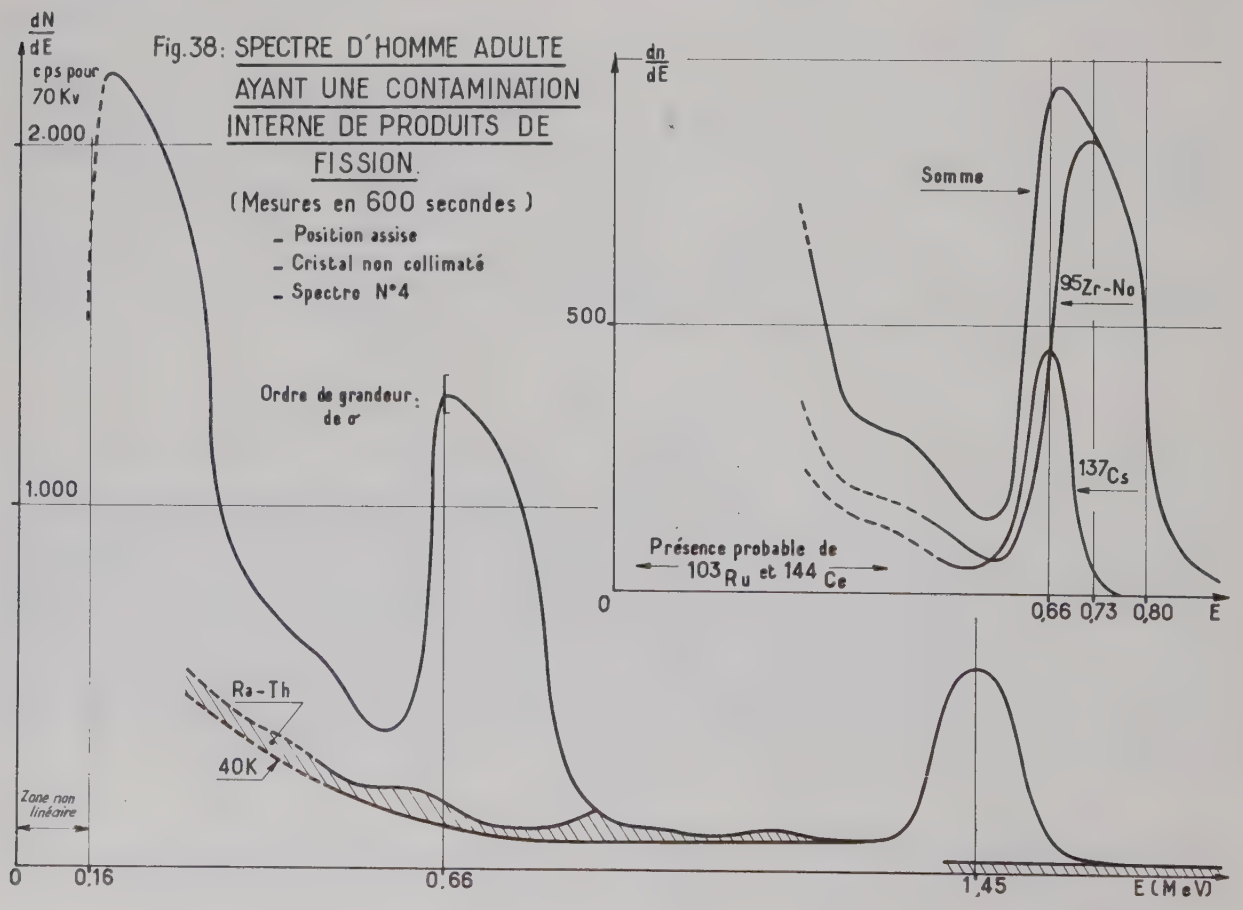


Fig. 38: SPECTRE D'HOMME ADULTE AYANT UNE CONTAMINATION INTERNE DE PRODUITS DE FISSION.
(Mesures en 600 secondes)
- Position assise
- Cristal non collimaté
- Spectre N°4

8.2.2 - Contamination par l'iode 131.

Le spectre obtenu est présenté figure 39. Il n'est pas possible de donner à partir de cet examen la quantité d'iode présente dans l'organisme. (On peut simplement affirmer qu'elle est très inférieure à la quantité maximum admissible). On sait en effet que l'iode se fixe dans le foie et, principalement, dans la thyroïde, c'est-à-dire reste étroitement localisé. Nous n'avons pas effectué d'étalonnage correspondant à ce cas où l'examen à l'aide d'un petit détecteur collimaté donne plus de précision (1).

Nous avons effectué sur la figure 39 une estimation graphique de la contribution au spectre de l'iode 131. On opère par soustractions successives des spectres des autres émetteurs en commençant par celui donnant l'énergie la plus élevée. Cette méthode est très générale et sera décrite de façon plus détaillée au chapitre 9.

8.2.3 - Cas d'une irradiation neutronique.

Divers éléments sont activés, mais parmi les nuclides produits on n'observe pratiquement que le ^{24}Na. En effet, le sodium est parmi les éléments ayant une grande section efficace le seul qui donne un émetteur γ ayant une activité spécifique suffisante (courte période).

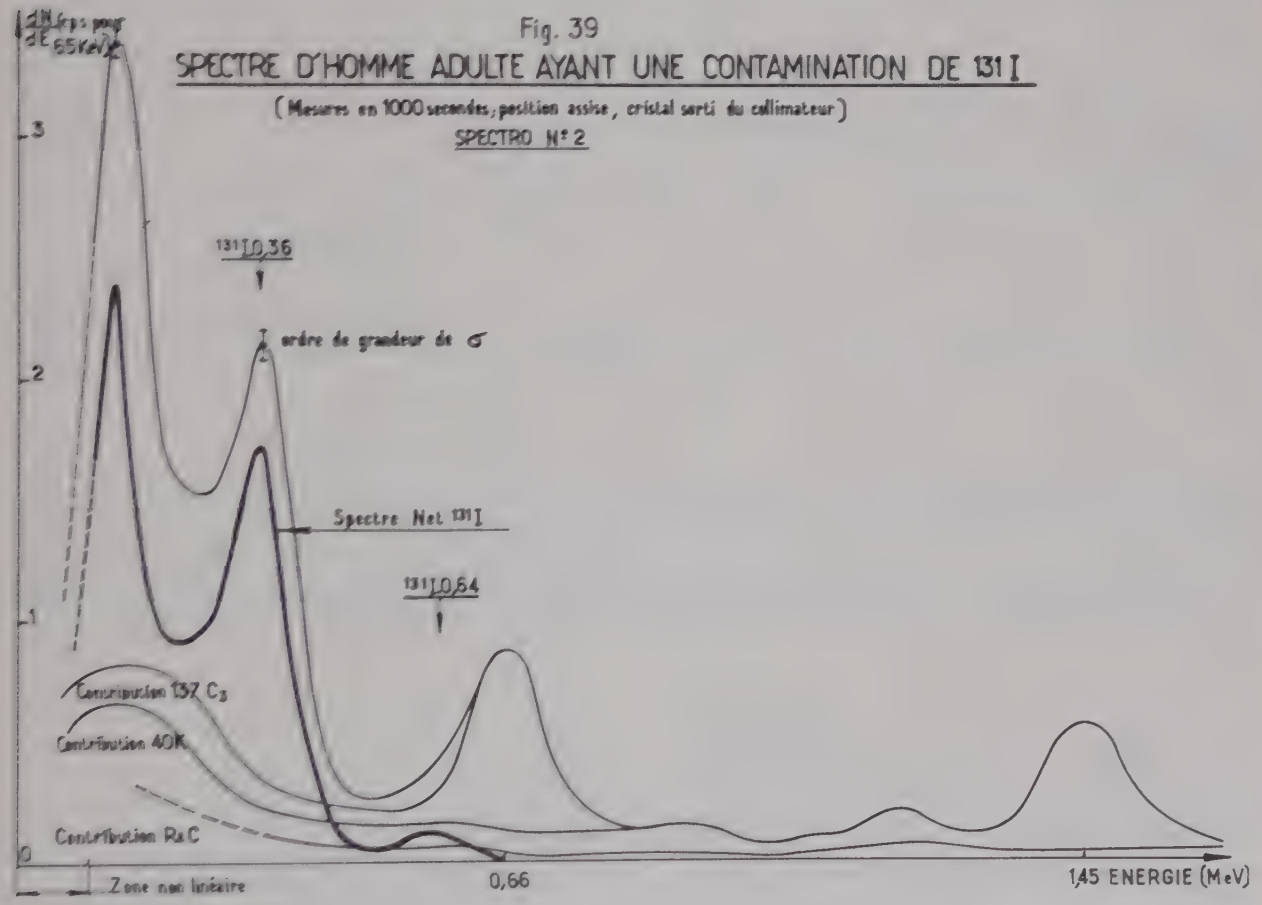
Le sodium naturel (100 p. 100 de ^{23}Na) donne par réaction (n, γ) du ^{24}Na de période 15 heures émetteur γ à 1,38 et 2,76 MeV pratiquement d'intensités égales. On peut ainsi en effectuant une mesure précoce estimer la dose reçue en neutrons supposés thermiques (Le corps humain du simple fait de sa présence rend thermique une proportion de l'ordre de 50 p. 100 des neutrons rapides reçus).

Fig. 39

SPECTRE D'HOMME ADULTE AYANT UNE CONTAMINATION DE 131 I

(Mesure en 1000 secondes, position assise, cristal sorti du collimateur)

SPECTRO N° 2



(1) L'iode 131 est utilisé comme traceur radioactif dans le diagnostic de certaines maladies pour lesquelles on effectue une véritable cartographie de l'organe examiné. On consultera à ce sujet les comptes-rendus de congrès sur le Scanning [47].

Nous donnons, figure 40, le spectre d'un homme irradié par des neutrons ainsi que la courbe de décroissance de l'activité. On trouve une période biologique de 14,7 heures, c'est-à-dire pratiquement égale à la période radioactive. Ce résultat nous permet d'estimer l'activité γ d'une personne séjournant 8 heures par jour dans un flux de neutrons thermiques égal à la dose de tolérance, soit 60 m.Rem/8 heures correspond à Φ = 2 000 n th/cm^2. s.

Si on a le schéma de réaction :

$$A \xrightarrow[(n,\gamma)]{} B \longrightarrow C$$

on peut écrire, n étant le nombre d'atomes :

$$\frac{dn_B}{dt} = \sigma_A \; \Phi \; n_A - \lambda_B n_B$$

Cette équation peut s'intégrer en considérant n comme une constante (irradiation interrompue peu avant la saturation par exemple). Il vient :

$$n_B = \frac{\sigma_A \; \Phi \; n_A}{\lambda_B} [1 - e^{-\lambda_B t}] + No_B \; e^{-\lambda_B t}$$

Le nombre de désintégrations par seconde et par cm est :

$$dA = \lambda_B \; n_B = \sigma_A \; \Phi \; n_A [1 - e^{-\lambda_B t}] + \lambda_B \; No_B \; e^{-\lambda_B t}$$

Supposons :

No_B = 0 (quantité de ^{24}Na lors de l'arrivée du travailleur)

σ_A = 500 mbarn Pour 1 g de sodium réparti sur 1 cm^2, il vient :

$$A = 5.10^{-25} \; . \; 2.10^3 \; . \; \frac{6.10^{23}}{23} \left[1 - e^{-\frac{0'7 \times 8}{15}} \right] = 8,17 \text{ dès/seconde au bout de 8 heures}$$

Admettons que le corps humain standard contienne 105 g de sodium [2] et que le flux soit uniforme sur toute la surface du corps. Cela correspond à :

$$A = \int \frac{dA}{ds} \, ds \; \# \; 8,17 \times 105 \times 2 \; \# \; 1\,710 \; \gamma \text{ émis dans } 4\pi$$
(2 γ par désintégration)

Le rendement global de notre appareil étant de l'ordre du pourcent (paragraphe 7.2) on recevra environ 17 cps, soit près de 2 fois l'activité d'un homme normal.

24 heures après, cette activité sera multipliée par $e^{-\frac{0'7 \times 24}{15}} \; \# \; 0,28$. Si le travailleur séjourne 5 jours par semaine à 8 heures/jour dans le flux considéré, les activités γ seront donc :

1er	jour	# 1 710 cps
2ème	jour	# 2 190
3ème	jour	# 2 320
4ème	jour	# 2 360
5ème	jour	# 2 370

Au moment de reprendre le travail la semaine suivante 130 cps.

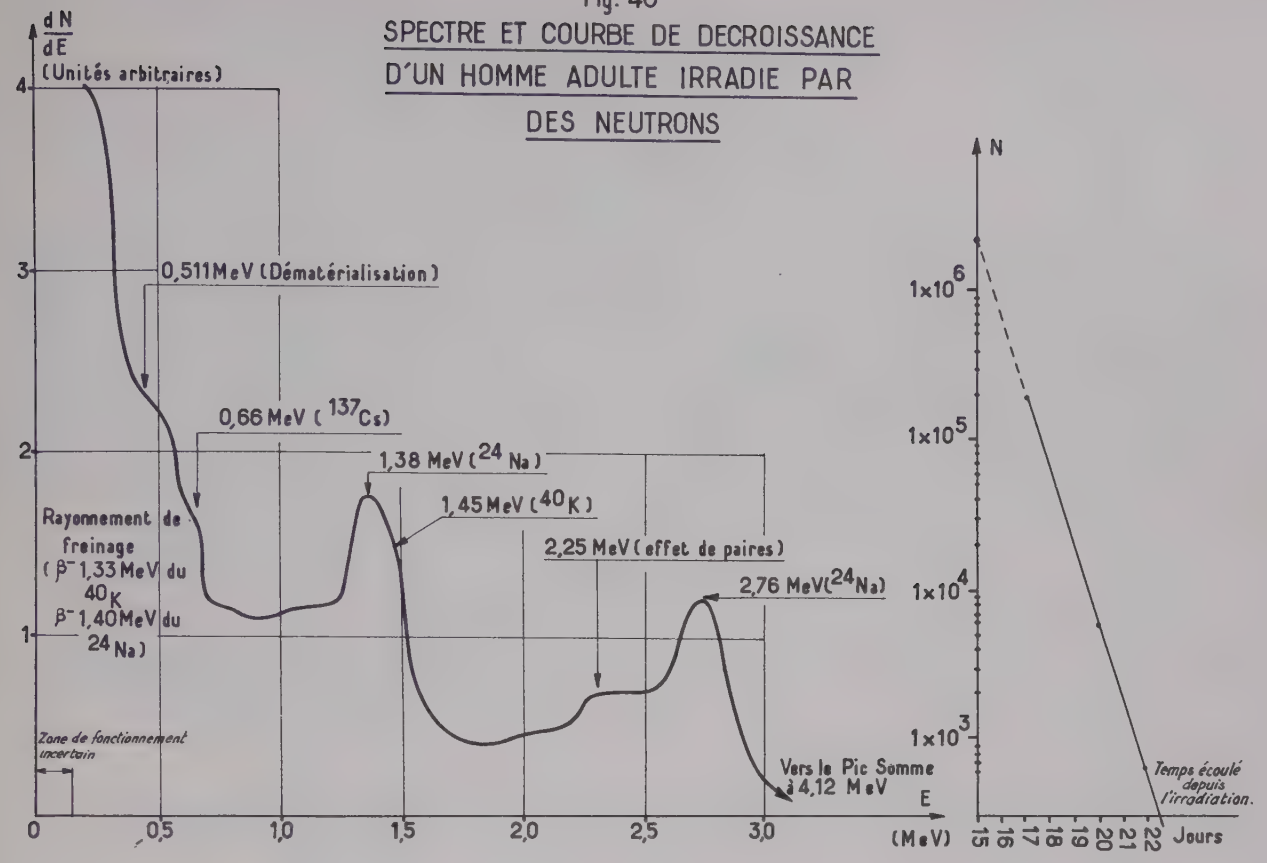
On peut d'autre part estimer la sensibilité limite de l'appareil. La détection sera faite sur le pic à 2,76 MeV pour lequel le mouvement propre est le plus réduit. Nous avons trouvé (figure 20)

$$b \; \# \; 0,5.10^4 \text{ coups en 900 minutes pour 61,5 keV}$$

soit, pour une mesure de 15 minutes $\frac{0,5}{6} . \; 10^3$ coups. La résolution pour cette énergie étant de l'ordre de 6 p. 100 avec le montage à 3 photomultiplicateurs, nous prendrons pour b la valeur cor-

Fig. 40

SPECTRE ET COURBE DE DECROISSANCE D'UN HOMME ADULTE IRRADIE PAR DES NEUTRONS



respondant à 3 canaux soit 250 coups. Si nous prenons comme sensibilité limite la valeur de σ il vient :

$$n = \sigma = \sqrt{n + 2b} \qquad n \# 23 \text{ coups en 900 secondes}$$

soit environ 0,025 cps reçus dans le pic correspondant à 0,125 cps total (paragraphe 7.2.1) et 92,5 γ/s émis. Si on se réfère au calcul précédent, on voit qu'on doit être capable de déceler moins du centième de dose pour une mesure immédiate. En pratique, nous admettrons que la sensibilité limite est de l'ordre du centième de "dose" soit un flux de 20 neutrons thermiques par cm² et par seconde reçu pendant 8 heures sur toute la surface du corps, dans l'hypothèse où le spectre du sujet est connu avant contamination. (Il importe en particulier à cette sensibilité de connaitre les composantes du thorium C" chez le sujet et dans le mouvement propre. (1)

8.3 - SENSIBILITE DE L'APPAREIL

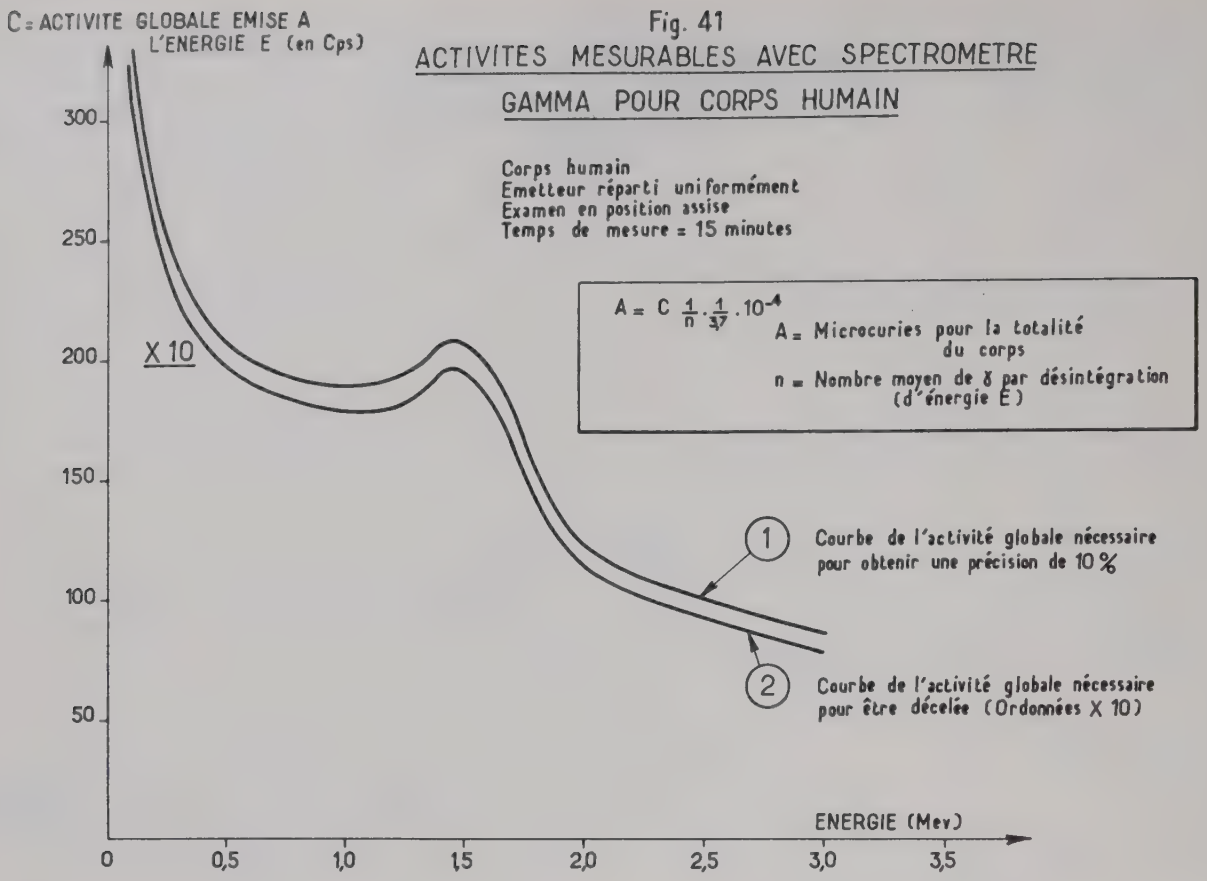
Nous avons dressé des courbes donnant en fonction de l'énergie de l'émetteur entre 0,1 et 3 MeV la limite de sensibilité atteinte et l'activité spécifique minimum nécessaire pour faire une mesure avec une précision statistique de 10 pour cent. Ces courbes sont représentées figure 41 en supposant un temps de mesure d'un quart d'heure que l'on peut effectivement utiliser en pratique avec nos appareils compte tenu des fluctuations possibles du mouvement propre.

---

(1) Cette sensibilité est de l'ordre de grandeur de celle obtenue avec les meilleurs films dosimètres du type multiécrans. Elle est environ 100 fois meilleure que celle des films courants. On remarque d'autre part que cette technique peut être utilisée pour l'étalonnage des sources de neutrons dans les laboratoires.

Fig. 41

ACTIVITES MESURABLES AVEC SPECTROMETRE GAMMA POUR CORPS HUMAIN



Les courbes sont établies de la façon suivante : Nous avons utilisé le spectre du mouvement propre en l'absence de rejet d'argon 41, cristal en dehors du collimateur avec mannequin inactif en position assise. Compte tenu de la courbe donnant la résolution en fonction de l'énergie (corrigée de la perte de résolution observée avec la "source" considérée), on en déduit les bandes d'énergies utilisées pour mesurer un pic photoélectrique et le mouvement propre dans ces bandes.

Les critères choisis ensuite sont :

- Pour la sensibilité limite :

$$n \geqslant \sigma \qquad \text{ou } n \geqslant \sqrt{n + 2b}$$

$$n \geqslant \frac{1}{2} + \sqrt{\frac{1}{4} + 2b}$$

n : comptage net dans le pic pendant le temps de la mesure

b : comptage du mouvement propre pendant le temps de la mesure

- Pour l'obtention d'une précision de 10 pour cent

$$\frac{n}{10} \geqslant \sigma \qquad \text{ou } n \geqslant 10\sqrt{n + 2b}$$

$$n \geqslant 50 + 10\sqrt{25 + 2b}$$

Les valeurs de n obtenues sont ensuite exprimées en chocs par seconde et affectées d'un coefficient tenant compte du rapport du comptage dans le pic au comptage total et du rendement global mesuré dans le cas considéré. L'ordonnée des courbes est exprimée en chocs par seconde pour la totalité du corps -avec l'hypothèse d'une répartition uniforme des émetteurs- de façon à correspondre directement au mode d'expression habituel des doses de tolérance.

Les activités, en curie, minimum décelables ou minimums nécessaires pour faire des mesures à 10 pour cent près sont déduites des ordonnées C des courbes par la formule.

$$A = C\frac{1}{n}\ \frac{1}{3,7}\ 10^{-4}$$

n : nombre moyen par désintégration émis à l'énergie considérée

A est exprimé en microcurie pour la totalité du corps.

A titre d'application, nous avons rassemblé dans le tableau figure 50 quelques valeurs de A pour les radioéléments rencontrés le plus fréquemment. Elles sont valables dans le cas où une seule énergie gamma est présente. Dans le cas contraire, on pourra admettre, à titre d'ordre de grandeur, les mêmes valeurs à condition d'appliquer convenablement la méthode de soustration des spectres en commençant par celui de l'émetteur donnant l'énergie la plus élevée. Cette soustraction devra être effectuée à partir de spectres obtenus au moyen d'étalons répliques aussi fidèles que possible de la "source". Elle peut être grandement facilitée par l'utilisation de sélecteurs d'amplitudes avec mémoires à tores magnétiques et conservation des spectres étalons sur bandes magnétiques ou bandes perforées [48] [49].

IX
AUTRES APPLICATIONS

9.1 - INTRODUCTION

Le but initial de ce travail était l'étude d'appareils permettant de façon aussi simple et peu onéreuse que possible la mesure par spectrographie γ des contaminations internes au niveau des quantités maxima admissibles. Mais ces appareils peuvent également être utilisés à d'autres recherches. C'est ainsi que nous avons vu que les performances obtenues permettaient une étude dans de bonnes conditions de la radioactivité de l'homme normal (sauf toutefois en ce qui concerne le radium) ; indépendamment du corps humain, le volume intérieur relativement grand de la protection et le système de détecteur unique avec collimateur se prête à l'étude d'autres sources.

Le mouvement propre, cristal collimaté, n'est pas en dehors des périodes de fluctuations beaucoup plus élevé (1) que celui obtenu dans les meilleures pièces blindées et permet d'espérer une bonne sensibilité. L'implantation des appareils dans un centre atomique limite cependant celle-ci puisqu'on ne peut en général opérer avec des temps de mesure très longs. L'effet de blindage par la source elle-même si elle est dense contribue toutefois à diminuer l'importance relative des fluctuations éventuelles.

Sans prétendre avoir réalisé un appareil universel, nous exposons dans ce chapitre les résultats obtenus dans quelques cas : L'appareil n° 2 a été utilisé notamment à des examens d'eau de mer (recherche des retombées radioactives), de roches (dosages de potassium en vue de la détermination du rapport argon/potassium pour le datage, recherche de traces d'uranium), de couches superficielles de terrains (recherche de produits de fission), d'échantillons végétaux, etc ... L'étude de la radioactivité de l'eau de mer exige du fait des très grandes dilutions des temps de comptage très longs et n'a pas été poursuivie avec notre installation. Parmi les autres mesures, nous décrirons celles relatives au dosage du potassium dans les verres et à la recherche des produits de fission dans les couches superficielles de terrains. Dans les deux cas, les résultats exposés au paragraphe 6.3 (recherche du rendement et de la meilleure géométrie avec du sable césié) sont approximativement valables. Nous indiquerons d'autre part les méthodes d'exploitation de spectres qui peuvent être utilisées et les sensibilités atteintes.

9.2 - DOSAGE DU POTASSIUM DANS LE VERRE EN PRESENCE DE RADIUM ET DE THORIUM

9.2.1 - Position du problème.

Le dosage par spectrographie γ du potassium dans le verre, outre l'intérêt des applications techniques éventuelles [50], nous permet d'étudier la recherche d'un constituant radioactif en présence de deux autres émetteurs d'activités supérieures. La recherche du potassium dans le verre s'apparente d'autre part à celles qui peuvent être effectuées sur des échantillons de roches.

L'échantillon présente presque toujours une radioactivité γ due au potassium d'une part, aux descendants de l'uranium et du thorium d'autre part, ces deux dernières causes pouvant être prépondérantes. Les étalons de comparaison utilisés devront donc être des mélanges homogènes de poudres inactives de composition pondérale voisine de celle de la source avec des quantités connues de l'un des trois émetteurs déterminées à la suite d'un premier examen spectrographique.

Pour l'étude du verre constitué principalement d'oxyde de silicium les étalons ont été préparés à l'aide de sable de Fontainebleau, de chlorure de potassium RP, de pechblende et de monazite, ces deux derniers composés pouvant être considérés comme donnant le spectre γ des descendants de l'uranium et du thorium en équilibre séculaire.

---

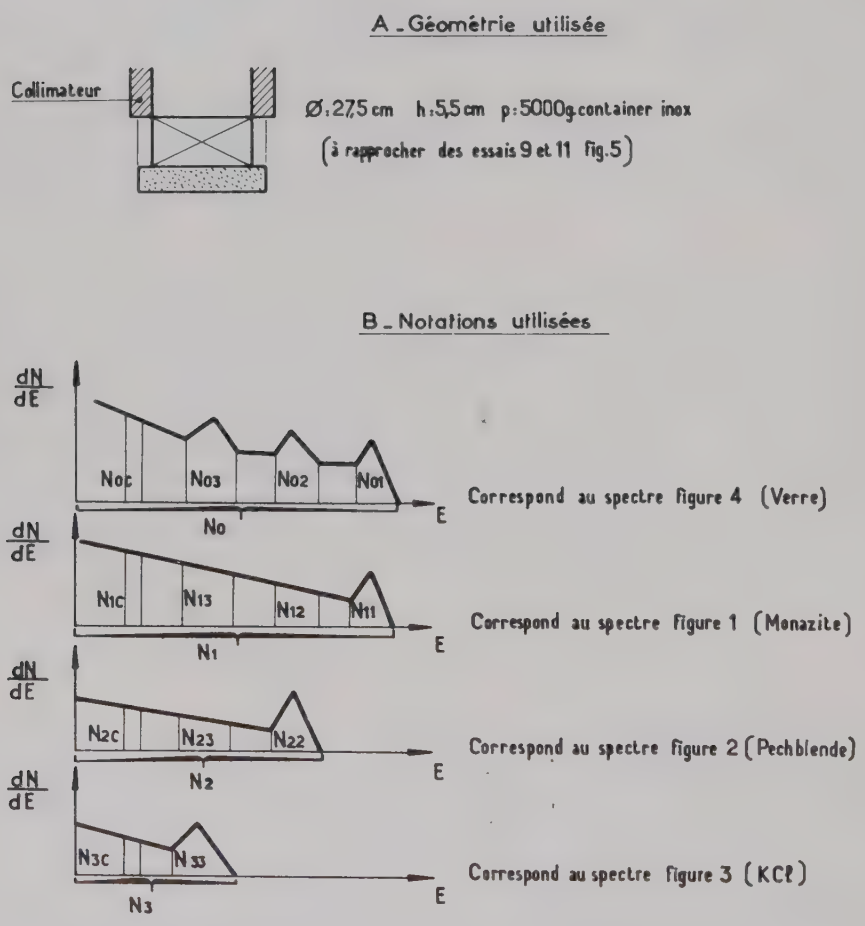
(1) Inférieur au double.

De tels mélanges sont préparés à l'aide de poudres et l'échantillon étudié doit être également broyé pour pouvoir être utilisé avec la même géométrie que les étalons. Nous avons vérifié que la granulométrie pouvait, en ce qui concerne l'échantillon supposé de composition uniforme, être assez grossière (de l'ordre du mm par exemple) (1). Nous avons également vérifié l'homogénéité de nos étalons : la proportionalité du taux de comptage avec la teneur en élément actif est réalisée à mieux que ± 2,5 p. 100 pour une préparation effectuée sans précaution particulière.

Enfin la recherche de la géométrie optimum effectuée au paragraphe 6. 3. a été précisée à l'aide de mélanges sable + KCl ; la forme du récipient retenue est indiquée figure 42-A.

Fig. 42

MESURE DE LA TENEUR EN POTASSIUM DE VERRES



---

(1) La figure 44 montre le spectre obtenu avec 5 kg du verre étudié en poudre de granulométrie de l'ordre du mm (courbe inférieure). Il y a un rapport 1,2 entre les deux comptages qui se conserve approximativement tout le long du spectre.

9.2.2 - Exploitation des spectres.

1/ Méthode utilisée (1).

Le spectre du mouvement propre étant effectué dans la géométrie choisie à l'aide de sable inactif, on trace les spectres nets de l'échantillon et des trois étalons (sable + KCl, sable + pechblende, sable + monazite). Les étalons sont, pour obtenir rapidement une bonne précision, beaucoup plus actifs que l'échantillon étudié et les spectres sont ramenés à un même temps de comptage.

La méthode utilisée pour mesurer la quantité de chacun des trois émetteurs présents dans l'échantillon consiste à soustraire successivement de l'activité globale celles dues à chacun des différents constituants en commençant par celui caractérisé par la plus haute énergie γ du spectre. La figure 42 B donne les schémas simplifiés permettant de suivre les calculs d'activité. Les notations reproduites sur les spectres figures 43 à 46 sont les suivantes :

L'activité mesurée dans une bande d'énergie est appelée de la lettre N affectée de deux indices. Le premier caractérise le spectre (0 pour l'échantillon, 1 pour l'étalon 1, etc ...). Le deuxième caractérise la bande (1 pour le pic photoélectrique donné par le γ d'énergie la plus élevée, etc ...)

Les teneurs - relatives aux étalons - sont données par :

$$t_1 = \frac{N_{01}}{N_{11}}$$

$$t_2 = \frac{N_{02} - t_1 N_{12}}{N_{22}}$$

$$t_3 = \frac{N_{03} - t_1 N_{13} - t_2 N_{23}}{N_{33}}$$

En retranchant l'activité des 3 constituants, on obtient pour chaque bande d'énergie élémentaire définie par un canal du sélecteur d'amplitude un nombre algébrique N_c (ou N pour l'ensemble du spectre). On a ainsi :

$$N_c = N_{0c} - t_1 N_{1c} - t_2 N_{2c} - t_3 N_{3c}$$

$$N = N_0 - t_1 N_1 - t_2 N_2 - t_3 N_3$$

S'il n'y a pas de quatrième corps, la variance de N doit être de l'ordre de N, ce que nous vérifions.

2/ Résultats obtenus.

Les figures 43 à 46 montrent les spectres nets obtenus au sélecteur à 100 canaux (largeur de canal : 37 keV) pour un poids de source de 5 kg et un temps de comptage de 30 minutes (temps actif).

La figure 43 donne les spectres du verre pour deux granulométries différentes ($\phi < 1$ mm et $\phi \# 2$ cm). Les figures 45 à 47 présentent avec une échelle 10 fois plus grande les spectres obtenus respectivement avec :

figure 45 : 4 g de monazite à 7,5 p. 100 de ThO_2 et 0,3 p. 100 de $U_3 O_8$ pour 5 kg
figure 46 : 0,45 g de pechblende à 30 p. 100 en U
figure 47 : 472 g de KCl R. P. (250 g de K naturel)

On remarque, figure 44, la présence des descendants de l'uranium : le pic à 2,2 MeV est plus intense que celui normalement très faible du Th C''. Cela ne présente aucun inconvénient puisque les résultats sont obtenus à partir du pic à 2,62 MeV.

De même, figure 45, on remarque un pic d'intensité très faible à 2,62 MeV décelant la présence de traces de thorium dans le plechblende ; la contribution de cet élément dans le pic à 2,2 MeV reste cependant négligeable.

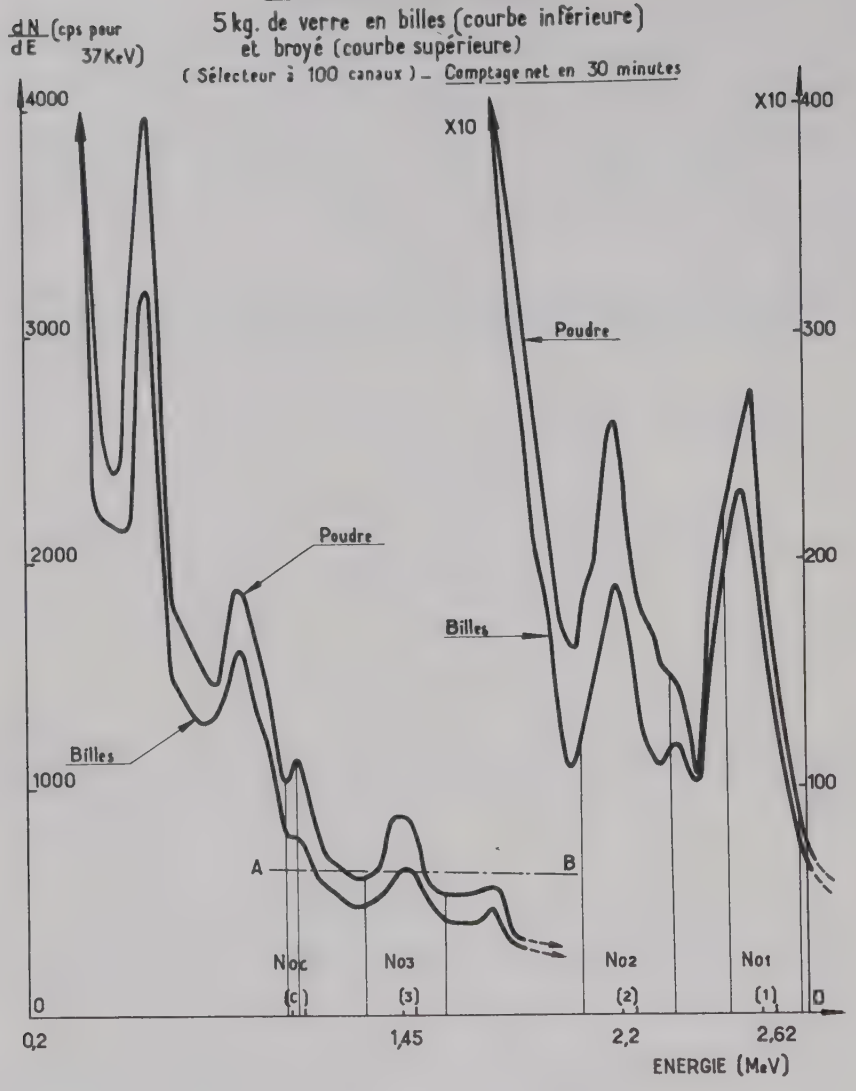
Les taux de comptage nets obtenus entre 0,4 et 3,4 MeV sont :

---

(1) Le calcul d'erreur et les résultats complets sont extraits de [51].

Fig. 43

SPECTRE DE VERRE



N_1 = 552.442 coups en 30 minutes (monazite)

N_2 = 448.885 " " " (pechblende)

N_3 = 146.306 " " " (KCl)

N_0 = 125.066 " en 60 minutes (verre $\emptyset$ < 1 mm)

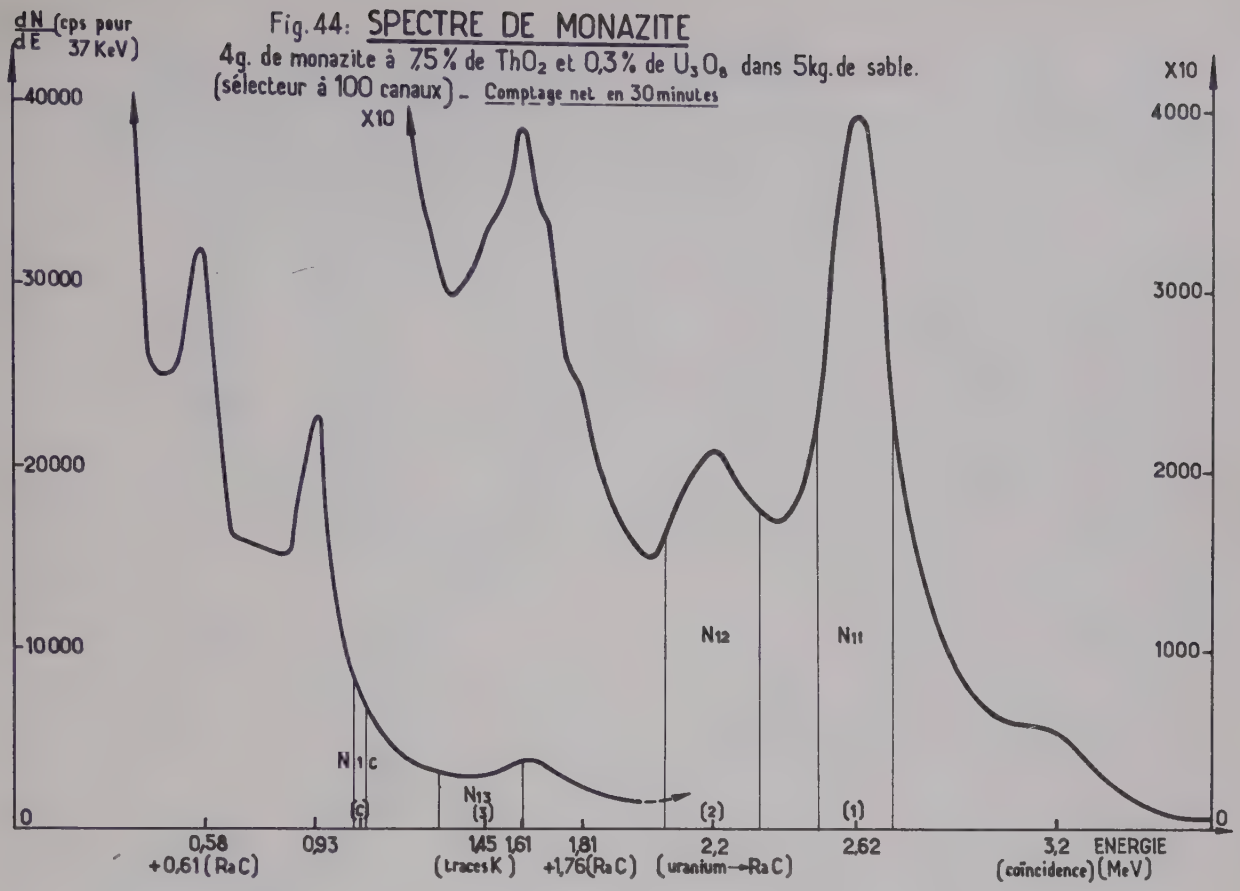
ν = 119.443 " " " (mouvement propre)

Les formules écrites au paragraphe précédent permettent de calculer les teneurs aprés réduction à des temps de comptage égaux. On trouve :

t_1 = 0,058 pour 4 g de monazite dans 5 kg, d'où une teneur du verre équivalente à 46,4 p. p. m. de monazite à 7,5 p. 100 de ThO_2

t_2 = 0,0505 pour 0,45 g de pechblende dans 5 kg d'où une teneur du verre équivalente à 4,6 p. p. m. de pechblende à 30 p. 100 en U.

t_3 = 0,026 pour 250 g de K naturel dans 5 kg soit une teneur du verre égale à 0,13 p. 100 en K ou 0,156 p. 100 en K_2O.



Nous avons calculé la précision sur la quantité de potassium.

On trouve :

- Teneur en K_2O : 0,156 ± 0,017 p. 100
- Par analyse chimique : 0,20 ± 0,05 p. 100

Les essais effectués sur ce verre à faible teneur en potassium conduisent donc, pour le dosage de cet élément, à des résultats plus précis que l'analyse chimique avec un temps d'opération inférieur puisqu'on évite le passage en solution (qui serait également nécessaire si on voulait opérer par photométrie de flamme). Cependant, la quantité d'échantillon nécessaire pour effectuer une mesure est supérieure au kilogramme (elle dépend évidemment de la teneur en potassium pour une précision donnée) ; ceci peut être un avantage si on désire examiner un prélèvement parfaitement représentatif.

9.3 - ETUDE DE LA CONTAMINATION DE SOLS PAR LES RETOMBEES RADIOACTIVES

9.3.1 - Position du problème.

Les retombées radioactives consécutives aux explosions nucléaires expérimentales ont répandu principalement sous forme de produits de fission une activité considérable sur toute la surface du globe. Les retombées peuvent être étudiées par diverses méthodes. Citons :

- Prélèvements en haute atmosphère (ballons-sondes-fusées)
- Prélèvements des précipitations (pluviomètres spéciaux)
- Prélèvements de la végétation et des couches superficielles de terrain.

La spectrographie γ d'échantillons de terrain (ou de végétaux) permet d'obtenir rapidement une estimation des quantités de la plupart des produits de fission retenus et de suivre leur cycle.

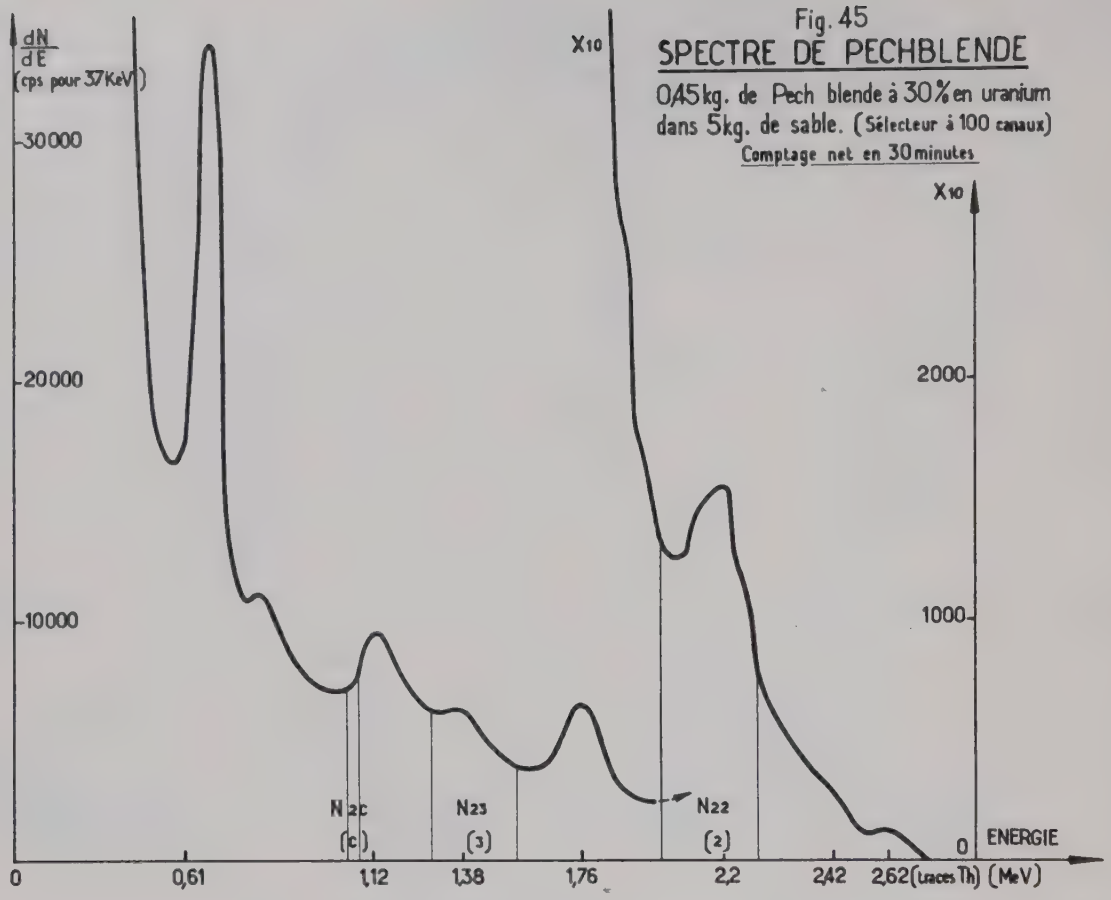


Fig. 45
SPECTRE DE PECHBLENDE
0,45 kg. de Pech blende à 30 % en uranium dans 5 kg. de sable. (Sélecteur à 100 canaux)
Comptage net en 30 minutes

Cependant, les activités spécifiques sont en général faibles et nécessitent d'utiliser des appareillages analogues à ceux que nous avons réalisés. A titre d'exemple, nous décrivons une étude de terrains prélevés dans la région de Saclay (terre à blé) en 1959. Cette étude a été menée à l'aide de l'appareil n° 2 (montage à 1 photomultiplicateur) ; nous indiquons la méthode de calcul utilisée pour obtenir des ordres de grandeur des activités présentes en l'absence de tout étalonnage.

9. 3. 2 - Méthode utilisée.

1/ Technique du prélèvement.

Pour être significatif des retombées radioactives, le lieu du prélèvement doit répondre aux conditions suivantes :

- Terrain plat, suffisamment éloigné de toute contre pente pour n'avoir pas reçu d'eaux de ruissellement.

- Sol exempt de fissurations qu'elles soient dues à la sécheresse ou à des cheminements d'origine animale de façon à être certain que le mécanisme de rétention des produits de fission par le sol n'ait pas été perturbé. (Il s'agit essentiellement d'un mécanisme d'échange d'ions).

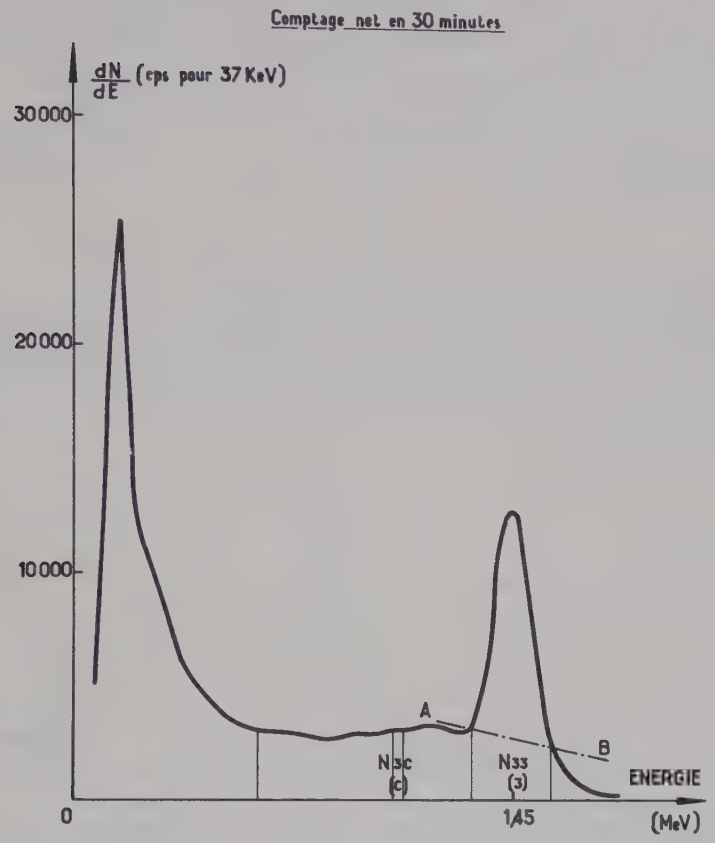
- Absence d'arbres ou de végétation haute aux alentours des prélèvements. De même absence de végétation à racines profondes.

- La nature du sol n'a pas été perturbée et ceci depuis longtemps soit par des circulations d'eaux souterraines, soit par des labours, soit même par des passages de véhicules d'hommes ou d'animaux.

Fig. 46

SPECTRE DE POTASSIUM

472 g. de KCl R.P. soit 250 g. de K naturel
dans 5 kg. de sable (sélecteur à 100 canaux)



- Le sol doit être aussi homogène que possible à l'échelle du prélèvement.

Les techniques de prélèvement utilisables sont variées. Citons le carottage, la méthode de la Station Expérimentale d'Hydraulique Agricole à Vergière mise au point par Mr J. Bourrier [52] (laquelle permet de conserver longtemps intacts les échantillons de sols) et la méthode plus simple que nous avons utilisée à Saclay :

L'herbe est fauchée au ras de terre sur un carré de 1 mètre de côté. Des parallélipipèdes de terrain d'environ 10 cm de côté sont ensuite découpés à l'intérieur de ce carré jusqu'à la profondeur désirée. (La teneur du sol en produits de fission décroit très vite avec la distance à la surface et un prélèvement de 10 à 20 cm de profondeur est en général suffisant pour recueillir l'ensemble des retombées). Pour effectuer ce travail, nous nous sommes servis d'outils en forme de burins et de masses utilisables soit en terrains contenant de nombreuses formations dures, soit en terrains meubles. Les parallélipipèdes obtenus sont ensuite découpés en tranches de l'épaisseur désirée. On prélève un nombre suffisant pour avoir dans chaque tranche d'épaisseur un poids d'échantillon permettant l'examen et si nécessaire une homogénéisation préalable.

Les lots une fois constitués sont sommairement séchés et broyés, les poids sont mesurés après prélèvement et après séchage. Si le lot comporte des parties aériennes de végétation, on peut effectuer une spectrographie avant et après lavage (légèrement nitrique par exemple) de façon à séparer l'activité simplement déposée sur les feuilles de celle réellement contenue dans la plante.

2/ Géométrie utilisée.

Nous avons utilisé le cristal dans la position où sa face inférieure est dans le plan de l'ouverture du collimateur. Le container est cylindrique avec un diamètre de 20 cm, soit le même que celui du cristal et une hauteur de 9 cm. Cette géométrie est voisine de celle indiquée figure 24 page 100 (essai 11) ; la profondeur d'échantillon est cependant plus élevée comme le permet la densité apparente plus faible.

3/ Estimation de l'activité.

Il serait long et assez difficile de procéder par étalonnage pour chaque élément repéré sur le spectre. Nous nous sommes contentés d'obtenir par le calcul un ordre de grandeur de l'activité présente :

Soient :

A : l'activité spécifique en curie par unité de poids pour un radioélément donné

n : le nombre moyen de photons γ d'énergie E émis par désintégration

p : le poids spécifique apparent de l'échantillon supposé homogène.

Un élément de volume dv pèse p. dv et émet :

$$d\,\alpha = 3,7.10^{10}\ A\ n_{(E)}\ p.\ dv$$

photons γ d'énergie E par seconde dans 4 π stéradians.

Considérons une trajectoire rectiligne issue du centre M d'un élément de volume dv et atteignant le cristal. Désignons par l'indice i les paramètres géométriques caractérisant cette trajectoire. Ils sont constants pour tous les rayons compris dans un angle solide dw_i autour d'une trajectoire donnée. Celle-ci est suivie jusqu'au cristal par les photons ne subissant dans la source aucune absorption ou diffusion et la contribution au comptage dans le pic photoélectrique du volume élémentaire considéré émettant dans la direction i est :

$$d\,\alpha_{(E)} \cdot r_{(E;i)} \cdot t_{(E,i)} \cdot e^{-\mu_{t(E)} x_i} \cdot \frac{dw_i}{4\pi}$$

$r_{(E,i)}$: efficacité du cristal

$t_{(E,i)}$: rapport du comptage dans le pic au comptage total

x_i : longueur apparente de la trajectoire dans la source

$\mu_{t(E)}$: coefficient d'absorption linéaire de la source

La contribution totale de l'élément dv s'obtient théoriquement en intégrant cette expression pour la surface sensible du cristal. Le comptage de l'ensemble de l'échantillon s'obtiendra ensuite par intégration des contribution élémentaires étendues au volume de la source.

En pratique, nous obtenons l'ordre de grandeur de l'activité cherchée en décomposant le volume de l'échantillon en n volumes Δv égaux suffisamment petits pour que l'angle solide sous lequel on voit la surface sensible du cristal ne varie que peu d'un point à un autre de Δv, et en estimant pour chacun de ces volumes une longueur moyenne d'absorption x_i. On effectue ensuite une simple sommation.

Afin de nous rendre compte de la précision permise par cette méthode, nous avons effectué le calcul dans le cas d'une source étalonnée (essai 11, paragraphe 6. 3. 1) en effectuant la décomposition en 9 volumes de révolution égaux.

On trouve A $\#$ 1,27. 10^{-8} Ci/kg, tandis que l'activité effectivement introduite était de 10^{-8} Ci/kg. La formule permet donc de trouver l'ordre de grandeur de l'activité à 30 p. 100 près. Les principales causes d'erreur étant celle sur l'évaluation de la valeur moyenne de la longueur apparente de la trajectoire dans la source (1) et sur celle du rendement moyen.

9. 3. 3 - Résultats obtenus.

Les courbes figure 47 montrent les spectres obtenus les jours suivant le prélèvement effectué en mai 1959 et concernant un échantillon de terre à blé de la région de Saclay.

La gamme d'énergie étudiée s'étend de 0,1 à 2 MeV et les activités sont données en chocs par 15 minutes pour 80 keV (comptage net, le mouvement propre étant de 33 000 chocs en 15 minutes de 0,1 à 2 MeV).

La courbe 1 représente le spectre de 500 g d'herbe prélevés sur 1 m . La courbe 2 représente le spectre de 2 200 g d'un mélange de terre et de racines, soit la fraction $\frac{1}{9,75}$ du prélèvement de la couche sous-jacente entre les profondeurs 0 et 2 cm. La courbe 3 représente le spectre de 2 200 g

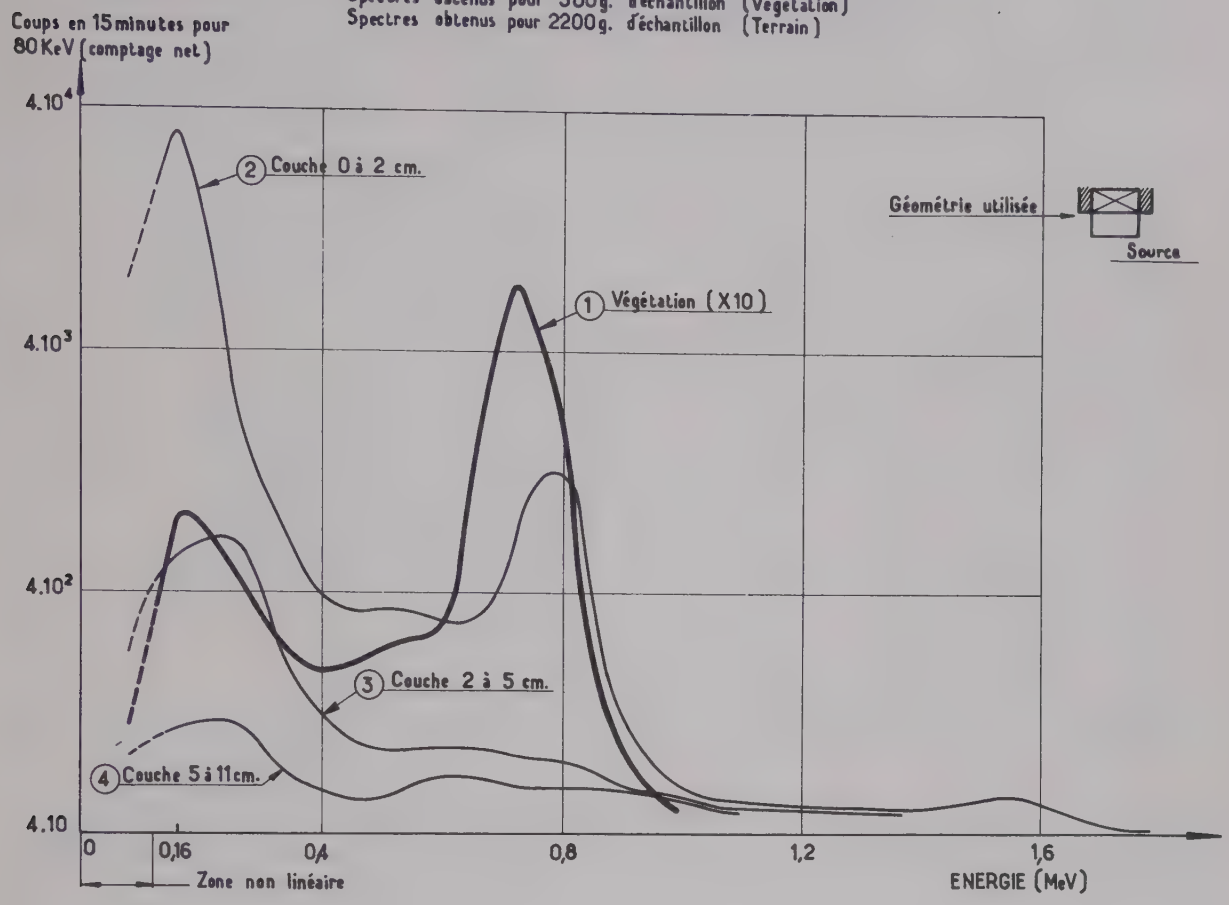
---

(1) D'autres vérifications effectuées sur des mélanges sable + KCl avec 5 cm d'épaisseur de source conduisent à une erreur inférieure à 20 p. 100 pour cette énergie.

Fig. 47

ACTIVITE DU SOL SACLAY EN 1959 (MAI)

Spectres obtenus pour 500g. d'échantillon (Végétation)
Spectres obtenus pour 2200g. d'échantillon (Terrain)



de terre soit la fraction $\frac{1}{20,75}$ du prélèvement de la couche sous-jacente entre les profondeurs 2 et 5 cm. La courbe 4 représente le spectre de 2 200 g de terre soit la fraction $\frac{1}{46,8}$ du prélèvement de la couche sous-jacente entre les profondeurs 5 et 11 cm.

Sur les courbes 1 et 2 se détachent un pic compris entre 0,7 et 0,8 MeV correspondant au ^{95}Zr-Nb qui apparaît comme le principal élément contaminant émetteur γ. On peut remarquer sur la courbe n° 3 deux légers mamelons correspondant à 0,6 et 0,75 MeV ; le premier est du au RaG et le deuxième au ^{95}Zr-Nb. Sur la courbe n° 4, le pic à 609 keV est nettement plus accentué et on peut admettre en première approximation que les produits de fission n'ont pas, pour leur très grande majorité, dépassé le niveau 5 cm. L'activité spécifique d'origine naturelle (radium, thorium, potassium) devant être approximativement la même pour les 3 couches de terrain, nous avons effectué la soustraction canal par canal des comptages lus courbe 2 et courbe 4. Le spectre obtenu -ramené à un prélèvement de 1 m est représenté figure 48 (page 97).

C'est le spectre caractéristique d'un mélange de produits de fissions où apparaissent principalement les pics ^{95}Zr-Nb et, avec une intensité moindre, ceux du ruthénium 103 dans la région de 0,5 MeV et du cérium et praséodyme 144 (basses énergies). Les mesures ont été refaites sur le même échantillon après une période d'un an pour laisser décroître le ^{95}Zr-Nb (Zr période 66 jours ; Nb : 37 jours). Le pic du ^{137}Cs apparaît alors.

Lot	Activité en 10^{-9} Ci/m² à la date du prélèvement	Radioélément	Observations
Végétation	0,5	^{137}Cs	95 p. 100 de l'activité en potassium (herbe non lavée)
"	11,5	^{95}Zr-Nb	
"	traces	^{144}Ce	
Couche 0-2 cm	40	^{144}Ce	120 p. 100 de l'activité en potassium
"	40	^{103}Ru - ^{106}Rh	
"	300	^{95}Zr-Nb	
"	20	^{137}Cs	
Couche 2-5 cm	50	^{144}Ce	45 p. 100 de l'activité en potassium
"	50	^{103}Ru - ^{106}Rh	
"	50	^{95}Zr-Nb, ^{137}Cs (ce dernier à l'état de traces	
Couche profonde	A ≪ 150	Non estimée (principalement Ra, Th, K)	
Total	A # 600 soit 0,6 Ci/Km² (valeur compatible avec les retombées observées)		

Un calcul analogue à celui du paragraphe précédent nous conduit à l'estimation suivante de l'activité de l'échantillon.

$$A_{(curie/m^2)} \# 0,7.10^{-9} \cdot S_{\substack{(surface\ du\ pic \\ en\ cps.\ m^2)}} \cdot \frac{1}{n_{\substack{(nombre\ moyen\ de \\ \gamma\ par\ désintégration)}}}$$

On en déduit le tableau d'activités ci-après :

Le rapport $\frac{^{137}Cs}{^{95}Zr\text{-}Nb}$ est à la date du prélèvement de l'ordre de 1/20.

9.4 - CONCLUSION : L'UTILISATION DE LA SPECTROGRAPHIE GAMMA COMME METHODE D'ANALYSE

Les deux applications que nous venons de décrire illustrent la puissance de la spectrographie γ en tant que méthode d'analyse. Les dispositifs spectrographiques pour faible activité trouvent leur intérêt lorsque l'on veut éviter de longues préparations d'échantillons -comportant notamment des changements d'état physique et que l'on peut disposer d'une quantité relativement importante de matière. Ils permettent alors les dosages de faibles teneurs de radioéléments qui peuvent être artificiels (traceurs, analyse par activation pour de nombreux corps dont le sodium) ou naturels (dosage de traces d'uranium, de thorium ou de leurs descendants et surtout du potassium). En particulier le dosage du potassium 40 directement accessible en spectrographie γ suivi par un dosage de l'argon 40 activité en argon 41 peut conduire à une méthode de détermination de l'âge des roches depuis moins de 1 million d'années jusqu'aux plus anciennes connues ($\# 4.10^9$ ans) [53].

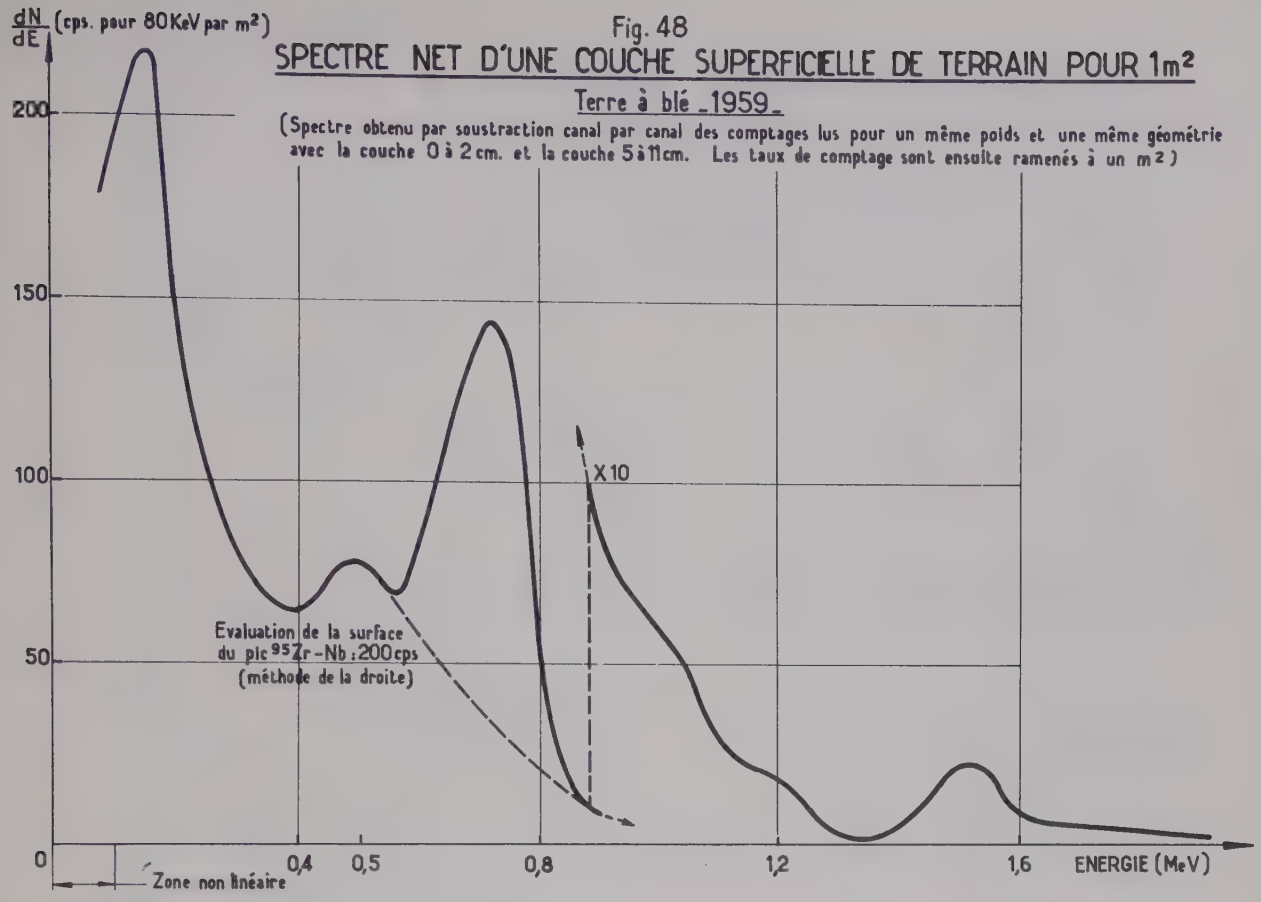
La sensibilité limite atteint par spectrographie γ dépend du temps de comptage. On peut cependant affirmer qu'elle permet la mesure de traces infimes (inférieures par exemple à 0,15 p. p. m. à 10 pour cent près pour des mesures d'une heure sur des verres ou des roches analysées en ^{40}K ce qui correspond à des teneurs en potassium naturel de l'ordre de 1 pour 1000.

Fig. 48

SPECTRE NET D'UNE COUCHE SUPERFICIELLE DE TERRAIN POUR 1m²

Terre à blé _1959_

(Spectre obtenu par soustraction canal par canal des comptages lus pour un même poids et une même géométrie avec la couche 0 à 2 cm. et la couche 5 à 11 cm. Les taux de comptage sont ensuite ramenés à un m²)



Nous présentons figure 49 les courbes donnant en fonction de l'énergie de l'émetteur (supposé uniformément réparti) entre 0,1 et 3 MeV la limite de sensibilité atteinte (mesure à 100 pour cent près) et l'activité spécifique γ minimum nécessaire pour faire une mesure avec une précision statistique de 10 pour cent en supposant un temps de mesure de une heure (effectivement utilisé avec notre appareil pour les sources dont on est maître du volume).

Ces courbes, analogues à celles présentées figure 41 pour le corps humain, sont obtenues de la même façon (décrite au paragraphe 8. 3.). La courbe de mouvement propre utilisée dans ce cas est celle obtenue la face inférieure du cristal étant dans le plan de l'ouverture du collimateur avec, placé contre, un échantillon cylindrique en sable inactif de 20 cm de diamètre et de 5 kg.

Remarque : Pour des sources ayant d'autres caractéristiques d'absorption que le sable, les courbes de la figure 49 ne représentent qu'un ordre de grandeur.

La résolution et le rapport du comptage dans le pic du comptage total varient de façon différente pour les sources étudiées et pour le corps humain ; cela explique l'allure différente des figures 41 et 49.

Enfin les ordonnées C sont ici exprimées en chocs par seconde par kilo. On en déduit l'activité A en curie par kilo décelable ou permettant une mesure à 10 pour cent par la formule

$$A = C \frac{1}{n} \frac{1}{3,7} 10^{-4}$$

n : nombre moyen par désintégration de γ émis à l'énergie considérée et, dans le tableau figure 50 nous avons rassemblé quelques exemples d'application en regard de ceux obtenus pour le corps humain.

Il faut cependant se rappeler que la précision dépend non seulement des quantités présentes mais de la fidélité des étalons. Les développements récents des sélecteurs d'amplitudes à mémoires magnétiques (FOLSOM, 1961 [49]) apportent à ce point de vue un perfectionnement important : il est

Figure 50

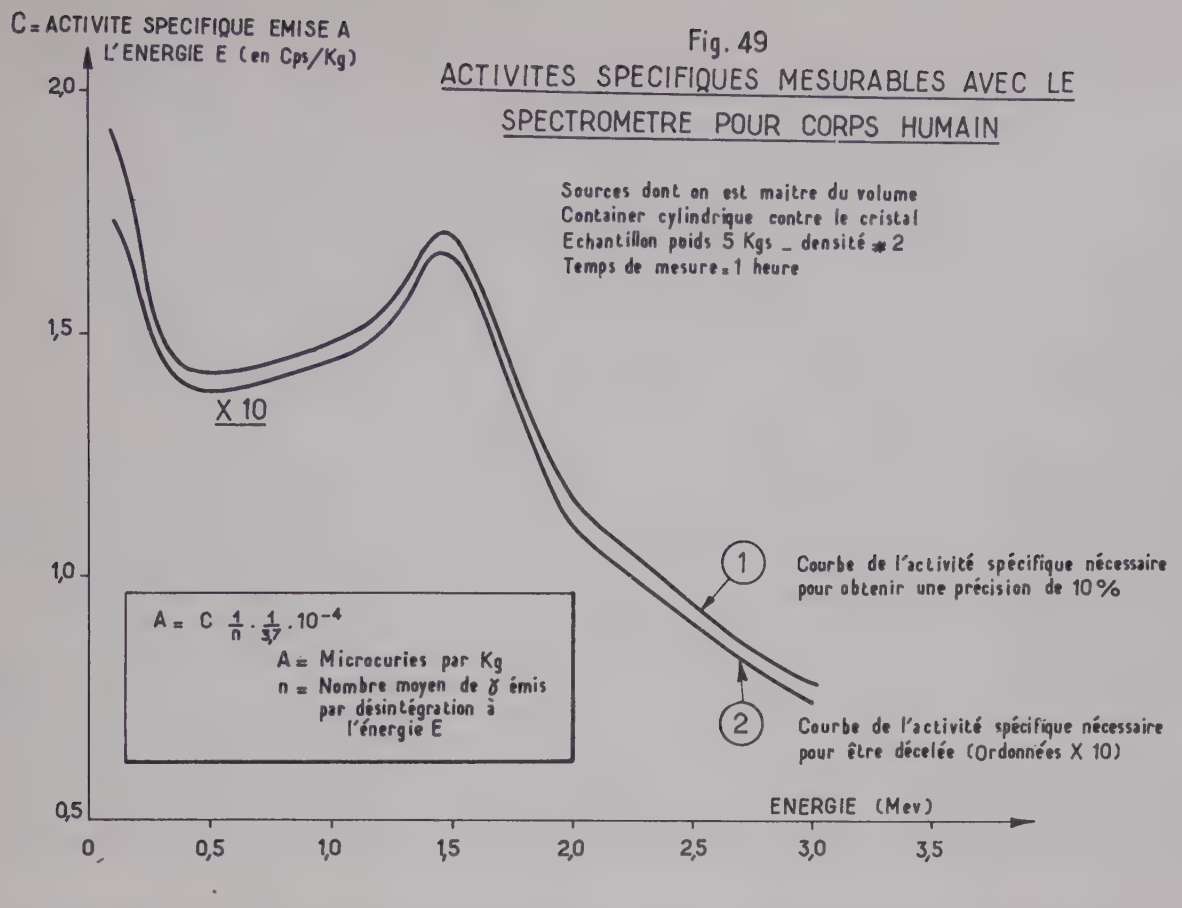
Tableau de quelques performances pouvant être atteintes avec le spectromètre γ n° 2

	Radioélément	Q. M. A. Homme (μ Ci pour la totalité du corps)	Q. M. A. Eau (μ Ci/Kg) pour 168 h/sem.	Energie (MeV)	Nombre de γ par désintégration	Limite de Sensibilité Homme (μ Ci pour la totalité du corps)	Limite de Sensibilité Sources cyl. (μ Ci/kg)	Activité nécessaire pour une mesure à 10 p. 100 Homme (μ Ci pour la totalité du corps	Activité nécessaire pour une mesure à 10 p. 100 Sources cyl. (μ Ci/kg)
Emetteurs	^{226}Ra (et U naturel en équilibre)	0,2	2.10^{-4}	1,76	0,26	$1,5.10^{-2}$	$1,4.10^{-4}$	16.10^{-3}	$1,4.10^{-3}$
	Th nat. en équilibre	7.10^{-2}	7.10^{-2}	0,93 2,62	1 0,34	5.10^{-4} $6,5.10^{-4}$	$0,4.10^{-5}$ $0,6.10^{-5}$	51.10^{-4} 75.10^{-4}	4.10^{-5} 7.10^{-5}
	U nat. Métal	0,2	7 (ins. 2.10^{-1})	0,09 (x)	≠ 1	8.10^{-4}	$0,5.10^{-5}$	85.10^{-4}	5.10^{-5}
	^{235}U	0,4	10 (ins. 3.10^{-1})	0,185	0,27	22.10^{-4}	$1,6.10^{-5}$	28.10^{-3}	$1,8.10^{-4}$
	^{40}K	-	-	1,45	0,11	$4,8.10^{-3}$	4.10^{-5}	55.10^{-3}	4.10^{-4}
	^{42}K	10	3 (sol.) 2.10^{-1} (ins)	1,52	0,18	$3,0.10^{-3}$	$2,4.10^{-5}$	31.10^{-4}	$2,4.10^{-4}$
	K naturel	env. 0,2% en poids	-	(^{40}K) ( )	(^{40}K) ( )	5,6 grammes	0,05 grammes	57,5 grammes	0,5 grammes
	^{137}Cs.	30	2.10^{-1} (sol.) 4.10^{-1} (ins.)	0,66	0,81	$6,2.10^{-4}$	$4,6.10^{-6}$	65.10^{-4}	48.10^{-6}
	^{92}Zr-Nb à l'équil.	Zr : 20/Nb : 40	$6.10^{-1}/4$	≠ 0,75	≠1	5.10^{-4}	$3,8.10^{-6}$	55.10^{-4}	4.10^{-5}
	^{131}I supposé unif. réparti	50	3.10^{-2}	0,36	0,87	$6,5.10^{-4}$	$4,5.10^{-6}$	7.10^{-3}	$4,5.10^{-5}$
	^{103}Ru-Rh à l'équil.	50 - 400	10^{2} - 2.10^{3}	0,5	0,9	$5,5.10^{-4}$	4.10^{-6}	6.10^{-3}	$4,1.10^{-5}$
	^{141}Ce	40	120	0,14	0,3	26.10^{-4}	$1,7.10^{-3}$	27.10^{-3}	$1,9.10^{-4}$
	^{65}Zn	60	10^{-3}	1,11	0,44	11.10^{-4}	$9,2.10^{-6}$	12.10^{-3}	$9,5.10^{-5}$
	^{60}Co	10	1	1,33	1	5.10^{-4}	$0,43.10^{-5}$	53.10^{-4}	$0,45.10^{-4}$
	^{24}Na	7	4	2,76	1	$2,2.10^{-4}$	$0,22.10^{-5}$	25.10^{-4}	$0,23.10^{-4}$
Irradiation neutrons th		2.000 n_{th} par cm^2. s		D'après la quantité de ^{24}Na formée		D/100 (séjour de 8h)		D/100 (séjour de 8h)	
émetteurs β^+	^{90}Sr-Y en équil.	20	4.10^{-3}	D'après le rayonnement de freinage produit		≠ 10^{-2}	≠ 10^{-4}	très approximativement 0,1 en supposant connu le spectre avant cont.	≠ 10^{-3}
émetteurs β^+	^{74}As	40	20	d'après le pic de dématériel	67 % de β^+	$7,5.10^{-4}$	6.10^{-6}	8.10^{-3}	6.10^{-5}

Ce tableau est dressé dans l'hypothèse d'une répartition uniforme d'un seul émetteur. Observations dans le texte chapitre 11.

Fig. 49

ACTIVITES SPECIFIQUES MESURABLES AVEC LE SPECTROMETRE POUR CORPS HUMAIN



en effet possible de se constituer une collection de spectres étalons conservés sous forme digitale sur bandes magnétiques et de les introduire dans le sélecteur affectés d'un coëfficient pouvant être une puissance de 2 entière positive ou négative. On peut alors procéder automatiquement à autant de soustractions ou d'additions de spectres que l'on désire pour retrouver le spectre de l'échantillon examiné. Dans le cas d'un spectre complexe avec superposition de raies, cette méthode permet d'obtenir rapidement et avec précision la teneur des différents constituants. Elle est naturellement aussi bien applicable au cas du corps humain ; cependant la précision sera alors affectée par les variations du rendement avec la géométrie (forme du sujet).

En définitive, la comparaison à teneurs égales de l'analyse par spectrographie γ, par spectrométrie de flamme d'arc ou d'étincelle ou de l'analyse chimique est souvent en faveur de la première méthode tant du point de vue précision que de celui de la sensibilité ou du temps total d'opération (préparation des échantillons et des étalons, mesure, interprétation des résultats). En particulier le dosage du potassium dans les verres ou dans les roches demande environ 36 heures par photométrie de flamme avec une précision de 10 pour cent pour des teneurs supérieures à 1 pour cent. Le même dosage demande environ 48 heures par gravimétrie et seulement 3 heures par spectrométrie gamma (temps de comptage de l'échantillon, du mouvement propre et temps de préparation de la source).

X

CONCLUSION

La présente thèse expose les résultats de recherches entreprises pour l'étude d'un dispositif de détection et spectrographie γ des contaminations radioactives internes chez l'homme, décrit les réalisations effectuées, les applications nouvelles qu'elles nous ont permis de promouvoir et donne les résultats de nouvelles mesures physiques que nous avons pu entreprendre grâce à l'excès de sensibilité présenté par nos réalisations sur celle strictement nécessaire pour atteindre le but primitif.

Nous avons établi et vérifié expérimentalement que le blindage contre le rayonnement des sources extérieures à l'enceinte spectrographique garde une efficacité surabondante pour le but poursuivi avec une épaisseur réduite à 5 cm de plomb. Ce blindage relativement mince singularise nos réalisations ; il a rendu possible l'installation de tels montages dans des bâtiments non spécialement aménagés et même sur véhicules routiers.

Parmi les nombreuses options possibles concernant la nature, le nombre et la répartition des détecteurs, nous avons retenu la disposition comprenant un détecteur unique à grande sensibilité (cristal de NaI (Tl) de 20 cm × 10 cm), muni d'un collimateur escamotable. Ainsi sont possibles, non seulement la détection et la spectrographie, mais la localisation au moins grossière des émetteurs.

Après un premier montage de laboratoire -encore en service- un prototype industriel à l'Exposition Atomique de Genève en 1958 ; avec des perfectionnements de détail, une petite série en est dérivée.

Désormais un médecin ou un biologiste peut choisie avec des variantes possibles une installation et l'exploiter dans, pratiquemment, n'importe quel local avec des garanties de bon fonctionnement.

Les réalisations étrangères sont très variées : certaines recherchent avant tout une grande sensibilité globale, permettant une détection très rapide au détriment de toute possibilité de spectrographie, (exemple : dispositif 4π à enveloppe de liquide scintillant) ; d'autres recherchent une résolution maximum et le temps de mesure admis est plus long ; le blindage prend alors une importance considérable ainsi que le choix des matériaux assurant un mouvement propre minimum.

Nos performances sont, malgré la légèreté relative des blindages (7 tonnes devant 50 tonnes environ pour une pièce blindée par 20 cm de fer), du même ordre de grandeur que celle des installations étrangères. Dans la bande 0,1 à 1,6 MeV le mouvement propre est d'environ 28 cps contre 18 cps pour une pièce blindée : la sensibilité correspondante est donc seulement $\frac{28}{18} = 1,25$ fois moins bonne. Ce déficit d'environ 25 pour cent en sensibilité, n'est nullement gênant pour la détection des Q. M. A. (1). Nous pouvons par exemple détecter le treizième de la dose de ^{236}Ra, le centième de la dose d'irradiation par neutrons thermiques (2), le cinquante millième de la dose de ^{137}Cs.

---

(1) Nous utilisons indifféremment dans le texte de ce chapitre les expressions Q. M. A., C. M. A. ou "dose".

(2) La "dose" est obtenue pour un séjour permanent de 8 heures par jour dans un flux de 2000 n/cm^2 s.

Le blindage effectué, nous avons analysé et étudié expérimentalement les causes des fluctuations du mouvement propre résiduel. En ce qui concerne nos installations de Saclay, nous avons établi que la principale et pratiquement la seule perturbation gênante, est le rejet de ^{41}A par les cheminées de piles atomiques distantes de 500 mètres de notre laboratoire. Le travail n'est alors possible, dans des conditions de stabilité acceptables, que pendant environ 50 pour cent du temps. Un blindage extérieur du laboratoire (murs et toit en béton épais) et un système de conditionnement d'air, affranchissent des fluctuations gênantes dans tous les cas. L'air intérieur à l'enceinte de mesure intervient en effet pour une grande part dans les fluctuations et les pièces fortement blindées doivent également être conditionnées. Hors d'un centre atomique, notre appareil est utilisable sans blindage nouveau ni climatisation et notre réalisation sur remorque routière présentée en 1959 à l'UNESCO (Congrès d'Electronique Médicale) a donné entière satisfaction au Département de la Protection Sanitaire du C.E.A.. Au cours de plusieurs campagnes de mesure, cette même installation a contrôlé le personnel du Centre d'Essais de Reggane. Les ensembles fixes réalisés ont de leur côté été utilisés soit par nous, soit par le Département de la Protection Sanitaire ou le Service Médical du Centre Industriel de Marcoule au contrôle des travailleurs et ont permis de mettre sur pied le contrôle permanent du niveau de radioactivité de la chaîne alimentaire (herbe, lait en poudre etc ...) et de procéder à la détermination de périodes biologiques d'éléments radioactifs (^{24}Na, ^{131}I).

Parmi les études de "contaminations", nous noterons en particulier l'examen des savants atomistes irradiés accidentellement à Vincha.

Les performances obtenues étant surabondantes pour atteindre le but initial, nous avons étendu le champ d'application de nos appareils à l'étude de la radioactivité naturelle du corps humain et au dosage de traces d'éléments radioactifs dans les roches (dosage du potassium par la radioactivité du K). Nous avons de même effectué au Service d'Electronique Physique de Saclay les premières mesures de la contamination superficielles des sols et de l'eau de mer par les retombées radioactives consécutives aux explosions expérimentales. Nous avons mis en évidence sur des prélèvements de sols (1959) les contaminations en ^{95}Zr - Nb, ^{103}Ru, ^{141}Ce, ^{137}Cs (activités totales à l'époque du prélèvement de 6.10^{-7} Ci/m^2 environ) ainsi que la décroissance rapide de l'activité en fonction de la profondeur.

Ces mesures sont depuis poursuivies à l'aide de dispositifs spécialisés.

La radioactivité naturelle du corps humain est essentiellement due à l'isotope 40 du potassium. Nous avons comparé une centaine de spectres γ de corps humain concernant des sujets des deux sexes de types morphologiques divers et d'âges généralement compris entre 20 et 40 ans. Les pics γ caractéristiques du ^{40}K et du ^{137}Cs y présentent des intensités du même ordre, en outre chez certains sujets nous présumons, mais ceci touche à la limite de sensibilité de nos appareils, la présence des descendants du radon ou du thoron.

La teneur pondérale moyenne en potassium observée est de 1,6 pour mille chez les hommes et 1,3 pour mille chez les femmes avec une dispersion importante. La teneur moyenne est plus élevée chez les sujets de type musculaire comme on pouvait s'y attendre.

Le césium-137, qui suit le même métabolisme que le potassium, est présent dans les retombées radioactives : ce fait explique son apparition dans les spectres avec une latence de l'ordre de plusieurs mois après l'explosion nucléaire qui l'a créé et dispersé. L'activité γ en césium est sensiblement égale à celle du potassium. Les teneurs trouvées sont du même ordre que celles publiées à l'étranger concernant des populations de régimes alimentaires comparables. Les retombées sont relativement uniformes autour du globe sous une même latitude.

Nous n'avons pas trouvé de différence significative entre les sujets examinés respectivement à Saclay et à Marcoule.

Comme application analytique de la radioactivité du ^{40}K, nous avons élaboré une technique de dosage non destructif du potassium dans les verres, à la fois plus rapide et plus précise que les méthodes classiques (gravimétrie ou plutométrie de flamme). Nous déterminons par exemple avec une précision de 10 pour cent la teneur en potassium (0,16 pour cent seulement) d'un verre sous sa forme brute (billes de 2 cm de diamètre) en un temps d'analyse de l'ordre de 1 heure, malgré la gêne apportée dans le cas mentionné par une activité γ des descendants de l'uranium et du thorium plus élevée que celle à mesurer. (Des mesures utilisant le rayonnement β auraient été pratiquement impossibles).

Notre méthode permet par sa rapidité de conduire la fabrication même du verre. L'échantillon utilisé pèse quelques kg : il est facile de le rendre représentatif.

Cette méthode nous permet de doser le potassium dans les roches [54] avec une précision de l'ordre de quelques pour cent (compte tenu de toutes les causes possibles d'erreur) sur échantillons de 2,5 kg grossièrement broyés.

Partis d'un problème de détection γ aux fins de contrôle sanitaire nous avons analysé les conditions physiques et élaboré les techniques correspondant au problème général de détection et de spectrographie γ de sources étendues de faible activité, dont le corps humain n'est qu'un cas particulier. L'étude générale présentée est accompagnée d'applications et de mesures chimiques, biologiques, géologiques nouvelles, dont l'avenir enrichira nécessairement la diversité. En même temps les résultats seront rendus plus faciles à exploiter par des techniques nouvelles de traitement des informations, telles que la soustraction automatique de spectres préalablement stokés sur bande magnétique (étude en cours au Service d'Electronique Physique de Saclay.

BIBLIOGRAPHIE

[1] DOUCET H. - C.E.A. - Note à paraître - (1962).

[2] TROUBLE M. - Etude d'une méthode de détection de plutonium par spectrographie γ à 17 keV ; application à la mesure des contaminations sur l'homme. Colloque sur certains aspects de la Dosimétrie des Rayonnements. A.I.E.A., Vienne, juin 1960 (R.D./61).

[3] KIEFER H. et MAUSHART R. (Kernforschungszentrum, Karlsruhe, All.) - Détermination de la charge corporelle de ^{239}Pu par spectrométrie γ au moyen de compteurs proportionnels. 2ème Colloque sur le Dosage de l'Activité du Corps Humain. A.I.E.A., Vienne, juin 1961 (S.M. 15/18).

[4] SIEGBAHN K. - β and γ ray spectroscopy - chapitre 5 par P.R. BELL - North Holland Pub. Co, Amesterdam, 1955.

[5] CROUTHAMEL C.E. (Argone National Laboratory) - Applied γ ray spectroscopy. Pergamon Press. London, 1960.

[6] JULLIOT C. - Spectrographe γ . Principes. Utilisation. Rapport CEA n° 1429, 1960.

[7] STRÓMINGER D., HOLLANDER J.M. et SEABORG G.T. - Table of isotopes. pub. par "Review of Modern Physics", *2*, II, April 1958. (Am. Inst. of Physics, N.Y.).

[8] HUNTER H.F. et BALLOU N.E. - Relative abundance of fission products. Nucleonics, *9*, 5, nov. 51.

[9] HEARTH R.L. - Scintillation spectrometry. γ ray spectrum catalogue. Juil. 57, Philips Pet. Co., Atomic En. Dis., Idaho Falls (USA).

[10] PIERSON D.H. (Harwell, G.B.) - Interprétation of γ ray scintillation spectra from fission product mixtures. British Journal of Applied Physics, 11, 8 Aug. 1960.

[11] MILLER C.E. - Radium in humans. Radiological Physical Division, Argonne National Laboratory Semi on report, June 1957, ANL 5755.

[12] MILLER C.E. et MARINELLI L.D. - In vivo measurements. Radiological Physical Division, Argone National Laboratory. Report, déc. 1956, ANL 56.79.

[13] MALAMOS B., BELCHER E.H., BINOPOULOS B. et CONSTANTINIDES C. (Univ. d'Athènes). Le comptage du rayonnement du corps humain dans les études chimiques à l'aide de la vitamine B_{12} marquée au ^{59}Fe, au ^{82}Br, au ^{58}Co et d'albumine marquée au ^{131}I. 2ème Colloque sur le Dosage de l'Activité du Corps Humain. A.I.E.A., Vienne, Juin 1961 (S.M. 15/1).

[14] SARGENT T. (Un. Berkeley, USA) - Etude de métabolismes à l'aide de ^{59}Fe, de ^{47}Ca et de ^{11}C dans le cas de certaines maladies. 2ème Colloque sur le Dosage de l'Activité du Corps Humain. A.I.E.A., Vienne, juin 1961 (S.M. 15/32).

[15] BLAHD N.H., CASSEM B. et LEDERER M. (Un. Los Angeles, USA) - Détermination quantitative du potassium du corps humain par des mesures du potassium 40 chez des malades atteints de distrophies musculaires et maladies apparentées. 2ème Colloque sur le Dosage de l'Activité du Corps Humain. A.I.E.A., Vienne, Juin 1961 (S.M. 15/45).

[16] ALBERT R.E. et ALTSHULER B. (Un. de New-York) - Utilisation d'un compteur de rayonnement γ du corps humain pour déterminer les quantités de particules inhalées par l'homme, déposées dans les poumons et éliminées. 2ème Colloque sur le Dosage de l'Activité du Corps humain. A.I.E.A., Vienne, juin 1961 (S.M. 15/42).

[17] Report of ICRP Comittee II on Permissible Dose for International Radiation (1959). publ. par "Health Physics", *3* , june 60 -Pergamon Press).

[18] 1er Symphosium sur la radioactivité du corps humain. Avril 1960 Vanderbilt U. , Nashville (Tennessee, USA).

[19] ROSE J. E. et MARINELLI L. D. - Radiological Physics Division. Argonne National Laboratory Report Feb. 1958, ANL 58-29, p. 158.

[20] SPIERS F. W. - The measurement of body radioactivity. Conférence at Leeds on April 16-17 1956. Brit. J. of Radiology Sup. n° 2, Alls off. London ed. 1957.

[21] RUNDO J. - The mesurement of body radioactivity. Conference at Leeds on April 16-17 1956. Brit. J. of Radiology Sup. n° 2, All s off. London ed. 1957.

[22] ANDERSON E. C. , SCHUCH R. L. , PERRINGS J. D. et LANGHAM N. H. - The Los Alamos human counter. Los Alamos Un. (USA) - Nucleonics, Janv. 1956.

[23] ANDERSON E. C. , NEWTON HAYS F. et HIEBERT R. D. - The Geneva counter Los Alamos Sc. Lab. (USA) - Report, July 1958.

[24] Preliminary review on whole body monitors in AIEA member states. 2ème Colloque sur le Dosage de l'Activité du Corps humain. A. I. E. A. , Vienne, Juin 1961.

[25] MILLER C. E. , MAY H. A. et MARINELLI C. D. (Argone USA) - The use of low level scintillation spectroscopy in the evaluation of the radioactive contamination in the human body. Symposium on health physics. O. E. C. E. , Riso (G. B.), Mai 1959.

[26] RUNDO J. - Body radioactivity measurement as an aid in assessing contamination by radionuclides. 2ème Conf. Int. sur les Applications Pacifiques de l'Energie Atomique. Genève, 1958. A/Conf. 15/P/1467.

[27] MAY H. A. et MARINELLI L. D. - Dispositifs à cristal d'Iodure de Sodium. Dimensions optimum du cristal et origine du bruit de fond (original Anglais). 2ème Colloque sur le dosage de l'Activité du Corps Humain. A. I. E. A. , Vienne, Juin 1961, S. M. 15/43.

[28] LANSIART A. , LELOUP J. et MORUCCI J. P. - Stabilisation du gain d'un ensemble à scintillation autour de la température ambiante par le choix de la constante RC d'anode du photomultiplicateur. Note CEA, Département d'Electronique, 1961.

[29] EVANS D. - The Atomic Nucleus (chap. 26 et 28) Mc Graw-Hill Book Compagny Inc. , 1955.

[30] BORRUS W. R - Unscrambling scintillation data. IRE Transactions on nuclear science.

[31] LANSIART A. (CEA) - Performances et résultats obtenus avec le spectrographe Ɣ du CEA pour l'examen de la radiocativité du corps humain (SM 15/27) 2ème Colloque sur le Dosage de l'Activité du Corps Humain A. I. E. A. , Vienne, Juin 1961.

[32] JOUVE B. , LANSIART A. - Etude expérimentale des variations de l'activité gamma ambiante Rapport DE/1390/SEAEP/175 (C. E. N. Saclay).

[33] MILLER C. E. , MARINELLI L. D. et ROSE J. E. - Radiological physics div. Argone National Laboratory. Report Sept. 1958, ANL 59/9.

[34] MILLER C. E. , MARINELLI L. D. , ROULAND R. E. et ROSE J. E. - An Analysis of the back ground radiation detected by NaI crystals. Scintillation counter symposium held. Feb. 1956 Washington I. R. E. transaction on nuclear science, NS 3, n° 4, Nov. 1956.

[35] HAINZELIN J. L. - EL3 - CENS éd.

[36] JEHANNO C. , BLANC A. , LALLEMANT C. et ROUX G. (CEA) - Appareils récents et méthodes nouvelles pour la mesure de la concentration des produits radioactifs dans l'atmosphère. Communication à la 2ème Conf. Int. sur les Applications Pacifiques de l'Energie Atomique - Genève , 1958.

[37] D'après SOKOLAVA (1947) et EVANS (1948).

[38] MORTON G. A. et MITCHELL J. A. - R. C. A. Rev. , 1948. 9, 632.

[39] PASCAL, MARSIN et LE MAIRE (CEA) - Etude de l'Optique d'Entrée du Photomultiplicateur 54 AVP. Rapport DE/SEA, n° 1359/768, 1960.

[40] TALLQVIST H. J. - Soc. Sci. Fenica. Comment. Phys. Math. , Finlande 1936, *5* , 24, 1-36, Table des angles solides sous lesquels on voit une ouverture circulaire à partir d'un point de l'espace. Traduction CEA n° A 623 (1960).

[41] PFAU A., KALLISTATOS G. et SCHORDER J. - Sur la détermination de la proportion de viande maigre dans le jambon de porc à l'aide de la mesure de l'activité γ du ^{40}K. Atom-Praxis, Dtsch., 1961, 7, 279-284.

[42] MILLER C.E. (Argone National Laboratory, USA) - Importance des positions relatives du cristal et du corps dans la mesure de l'activité γ (SM 15/37). 2ème Colloque sur le Dosage de l'Activité du Corps Humain A.I.E.A., Vienne, Juin 1961.

[43] MARINELLI L.D., MILLER C.E., GUSTAFSON P.F. et ROULAND R.E. - Quantitative determination of γ ray emitting elements in living persons. American Journal of Roentgenology, 1955, *73*,

[44] YAMAGATA N. et YAMAGATA T. - The concentration of ^{137}Cs in human tissue and organs Inst. of Pub. Health, Tokyo, Gumma Univ., KIRIO (Japon).

[45] ONSTEAD Von C.O., OBERHAUSEN E. et KEARY F.V. - Messungen des kalium und cäsium 137 gehaltes des deutchen bevolherung. Atompraxis Deutsch., 1960, *6*, 9, 137

[46] ANDERSON et KANGHAM - Science, USA, 1959, 130, n° 3377.

[47] Medical Radioisotope Scanning. Proceedings of a seminar Jointly organized by the A.I.E.A. Vienna, 1959, 25-27 Feb., Masson éd.

[48] LEE W. - Anal. Chem., *31*, 1959, 800-806

[49] FOLSOM T.R., et CRAMER R.A. (USA) - Utilisation de boucles de bandes magnétiques pour la conservation et le dépouillement de spectres γ (SM 15/39). 2ème Colloque sur le Dosage de l'Activité du Corps Humain A.I.E.A., Vienne, Juin 1961.

[50] LE CLERC P. - Industrie du verre, utilisation des radioéléments. Atome et Industrie (Genève). n° IV/C. 12.

[51] JOUVE B., LANSIART A., MORUCCI J.P. - Détermination par spectrométrie gamma de la teneur en potassium d'un échantillon de billes de verre. Rapport DE/1464/SEAES/178 (CEN Saclay).

[52] BOURRIER S. - Mesure des caractéristiques Hydrodynamiques des sols à la station expérimentale d'hydraulique agricole (Vergiere). Ministère de l'Agriculture. Div. Gén. du Génie Rural. Imp. Nale. 1954.

[53] DONALD CARR R.C. et LAWRENCE J.KULP - Potassium Argen Method of Geochronométrie. Bull. of the Geological Society of America, June 1957, *68*, 773.

[54] JOUVE B., LANSIART A., LETOLLE R., MORUCCI J.P. - Utilisation de la radioactivité naturelle du potassium pour son dosage dans les roches par spectrométrie gamma. Bull. Soc. Fr. de Géologie, Juin 1962, 7, III

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

GEOCHRONOMETRIE PAR LA METHODE POTASSIUM 40 - ARGON 40 -

Vu et approuvé
Orsay, le 10 Mai 1962
Le Doyen de la Faculté des Sciences,
Marc ZAMANSKY

Vu
et Permis d'imprimer:
Le Recteur de l'Académie
de Paris,
J. ROCHE

IMP. LOUIS-JEAN – GAP

Dépôt légal no 168 – 1963